

(19) 日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-253298

(P2004-253298A)

(43) 公開日 平成16年9月9日 (2004.9.9)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	F I	テーマコード (参考)
H05B 33/14	H05B 33/14 B	2H091
C09K 11/06	C09K 11/06 610	3K007
G02F 1/13357	C09K 11/06 615	
H05B 33/22	C09K 11/06 620	
	C09K 11/06 635	
審査請求 未請求 請求項の数 19 O L (全 577 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2003-43860 (P2003-43860)  
 (22) 出願日 平成15年2月21日 (2003.2.21)

(71) 出願人 000001270  
 コニカミノルタホールディングス株式会社  
 東京都千代田区丸の内一丁目6番1号  
 (72) 発明者 福田 光弘  
 東京都日野市さくら町1番地コニカ株式会  
 社内  
 (72) 発明者 源田 和男  
 東京都日野市さくら町1番地コニカ株式会  
 社内  
 Fターム(参考) 2H091 FA44X FA44Z FB02 FC02 FC12  
 FC22 FC24 GA01 GA02 LA30  
 3K007 AB02 AB03 AB04 AB11 DB03  
 FA01

(54) 【発明の名称】 白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子

## (57) 【要約】

【課題】 高効率、長寿命で、均一な白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を具備してなる照明装置、表示装置または電気器具を提供することを目的とするものである。

【解決手段】 少なくとも1つの層に特定構造を有する化合物から選ばれる少なくとも1種の蛍光性化合物を含有し、かつ発光が実質白色であることを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【選択図】 なし

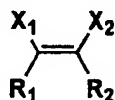
## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

少なくとも 1 つの層に下記一般式 (A1-1) ~ (F1-5) でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも 1 種の化合物を含有し、かつ発光が実質白色であることを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【化 1】

## 一般式(A1-1)



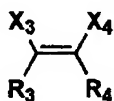
10

〔式中、 $\text{X}_1$ 、 $\text{X}_2$  はアリール基または複素環基を表し、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$  はアリール基、複素環基、脂環式炭化水素の残基またはシクロアルコキシ基を表し、かつ、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$  のいずれか一方は脂環式炭化水素の残基またはシクロアルコキシ基を表す。また、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$  は脂環式或いは複素環式の環を形成してもよい。〕

## 【化 2】

20

## 一般式(A1-2)

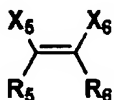


〔式中、 $\text{X}_3$ 、 $\text{X}_4$  はアリール基または複素環基を表し、 $\text{R}_3$ 、 $\text{R}_4$  はアリール基、複素環基、アリールオキシ基、アルキルチオ基またはアリールチオ基を表し、かつ、 $\text{R}_3$ 、 $\text{R}_4$  のいずれか一方はアリールオキシ基、アルキルチオ基またはアリールチオ基を表す。〕

30

## 【化 3】

## 一般式(A1-3)

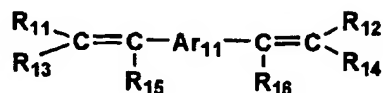


〔式中、 $\text{X}_5$ 、 $\text{X}_6$  はアリール基または複素環基を表し、 $\text{R}_5$ 、 $\text{R}_6$  はアリール基、複素環基、ハロゲン原子を表し、かつ、 $\text{R}_5$ 、 $\text{R}_6$  のいずれか一方はハロゲン原子を表す。〕

40

## 【化 4】

## 一般式(A1-4)



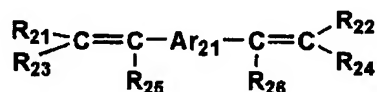
50



〔式中、 $Ar_{11}$  はアリーレン基を表し、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$  は水素原子または置換基を表し、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$  は水素原子又は置換基を表すが、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$  の少なくともいずれか一方は脂環式炭化水素の残基を表す。〕

【化 5】

### 一般式(A1-5)

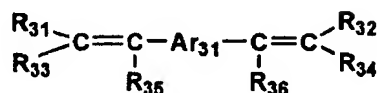


10

〔式中、 $Ar_{21}$  はアリーレン基を表し、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$  は水素原子または置換基を表し、 $R_{25}$ 、 $R_{26}$  は水素原子又は置換基を表すが、 $R_{25}$ 、 $R_{26}$  の少なくともいずれか一方はアリールオキシ基、アルキルチオ基またはアリールチオ基を表す。〕

【化 6】

### 一般式(A1-6)



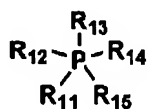
20

〔式中、 $Ar_{31}$  はアリーレン基を表し、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{33}$ 、 $R_{34}$  は水素原子または置換基を表し、 $R_{35}$ 、 $R_{36}$  は水素原子又は置換基を表すが、 $R_{35}$ 、 $R_{36}$  の少なくともいずれか一方はハロゲン原子を表す。〕

【化 7】

30

### 一般式(A2-1)

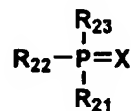


〔式中、P はリン原子を表し、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$  および  $R_{15}$  は一価の置換基を表す。〕

【化 8】

40

### 一般式(A2-2)

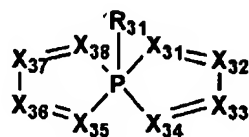


〔式中、P はリン原子を表し、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$  および  $R_{23}$  は一価の置換基を表し、X はカルコゲン原子を表す。〕

50

【化 9】

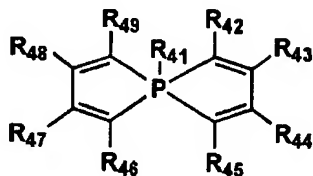
## 一般式(A2-3)



〔式中、Pはリン原子を表し、 $R_{31}$ は一価の置換基をあらわし、 $X_{31}$ 、 $X_{32}$ 、 $X_{33}$ 、 $X_{34}$ 、 $X_{35}$ 、 $X_{36}$ 、 $X_{37}$ および $X_{38}$ はそれぞれ窒素原子またはC- $R_{32}$ をあらわす。 $X_{31}$ 、 $X_{32}$ 、 $X_{33}$ 、 $X_{34}$ 、 $X_{35}$ 、 $X_{36}$ 、 $X_{37}$ および $X_{38}$ の複数がC- $R_{32}$ で表されるとき、それぞれは同じでも異なってもよい。 $R_{32}$ は一価の置換基を表す。〕

【化 10】

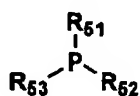
## 一般式(A2-4)



〔式中、Pはリン原子を表し、 $R_{41}$ 、 $R_{42}$ 、 $R_{43}$ 、 $R_{44}$ 、 $R_{45}$ 、 $R_{46}$ 、 $R_{47}$ 、 $R_{48}$ および $R_{49}$ は一価の置換基を表す。〕

【化 11】

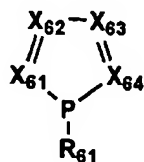
## 一般式(A2-5)



〔式中、Pはリン原子を表し、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ および $R_{53}$ は一価の置換基を表す。〕

【化 12】

## 一般式(A2-6)



10

20

30

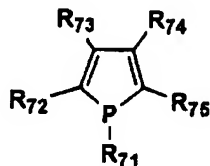
40

50

〔式中、Pはリン原子を表し、 $R_{61}$ は一価の置換基をあらわし、 $X_{61}$ 、 $X_{62}$ 、 $X_{63}$ および $X_{64}$ はそれぞれ窒素原子またはC- $R_{62}$ をあらわす。 $X_{61}$ 、 $X_{62}$ 、 $X_{63}$ および $X_{64}$ の複数がC- $R_{62}$ であらわされるとき、それぞれは同じでも異なってもよい。 $R_{62}$ は一価の置換基を表す。〕

【化13】

### 一般式(A2-7)

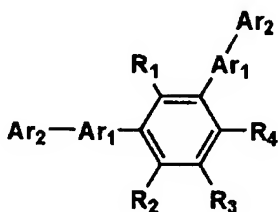


10

〔式中、Pはリン原子を表し、 $R_{71}$ 、 $R_{72}$ 、 $R_{73}$ 、 $R_{74}$ および $R_{75}$ は一価の置換基をあらわす。〕

【化14】

### 一般式(B1-1)



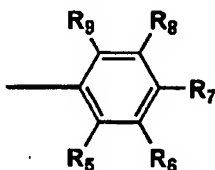
20

〔式中、 $R_1 \sim R_4$ はそれぞれ独立に水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子を表し、 $Ar_1$ は2価の芳香族炭化水素基を表し、 $Ar_2$ は下記の一般式(B1-2)で表されるアリール基を表す。〕

30

【化15】

### 一般式(B1-2)

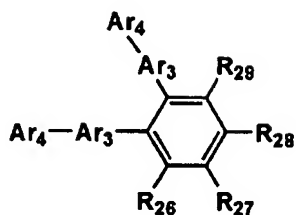


40

〔式中、 $R_9$ は水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子を表し、 $R_5 \sim R_9$ はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、 $R_5 \sim R_9$ のうち隣接するものは結合して環を形成しても良い。〕

【化 1 6】

## 一般式(B1-6)

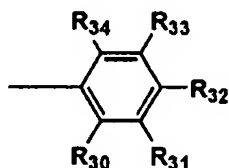


10

〔式中、 $R_{26} \sim R_{29}$  はそれぞれ独立に水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子を表し、 $Ar_3$  は2価の芳香族炭化水素基を表し、 $Ar_4$  は下記の一般式(B1-7)で表されるアリール基を表す。〕

【化 1 7】

## 一般式(B1-7)



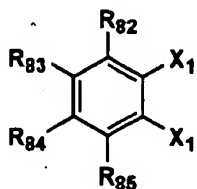
20

〔式中、 $R_{34}$  は水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子を表し、 $R_{30} \sim R_{33}$  はそれぞれ独立に水素原子または置換基を表し、 $R_{30} \sim R_{34}$  のうち隣接するものは結合して環を形成しても良い。〕

【化 1 8】

30

## 一般式(B1-11)

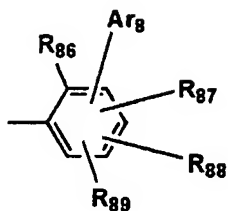


40

〔式中、 $R_{82} \sim R_{85}$  はそれぞれ独立に水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、置換又は無置換のアリール基又はハロゲン原子を表し、 $X_1$  は、下記一般式(B1-12)で表されるアリール基を表す。〕

【化 19】

## 一般式(B1-12)



10

〔式中、 $R_{86}$  はアルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子を表し、 $R_{87} \sim R_{89}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アルコキシ基、置換又は無置換のアリール基またはハロゲン原子を表す。 $A r_8$  は芳香族炭化水素基を表す。〕

【化 20】

## 一般式(B1-13)

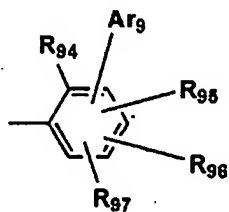


20

〔式中、 $R_{90} \sim R_{93}$  はそれぞれ独立に水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基、置換又は無置換のアリール基又はハロゲン原子を表し、 $X_2$  は、下記一般式(B1-14)で表されるアリール基を表す。〕

【化 21】

## 一般式(B1-14)



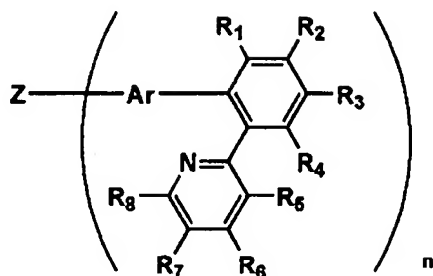
30

〔式中、 $R_{94}$  はアルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子を表し、 $R_{95} \sim R_{97}$  はそれぞれ独立に水素原子、アルキル基、アルコキシ基、置換又は無置換のアリール基またはハロゲン原子を表す。 $A r_9$  は芳香族炭化水素基を表す。〕

40

【化 2 2】

## 一般式(B2-1)

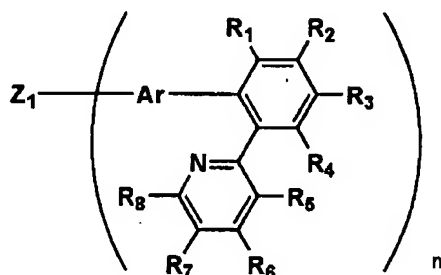


10

〔式中、Zはn価の連結基または単なる結合手を表し、Arは2価のアリーレン基を表し、R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>は各々水素原子または置換基を表す。nは2以上6以下の整数を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。〕

【化 2 3】

## 一般式(B2-2)

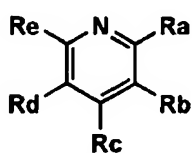
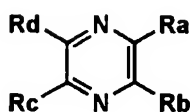
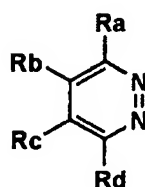
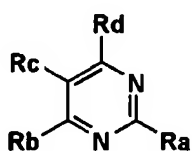
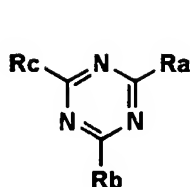


20

30

〔式中、Z<sub>1</sub>は

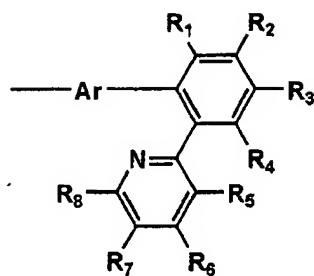
【化 2 4】

Z<sub>1</sub>:

40

を表し、nは2以上6以下の置換基を表す。R<sub>a</sub>～R<sub>e</sub>のうち少なくとも2つは、

【化 2 5】



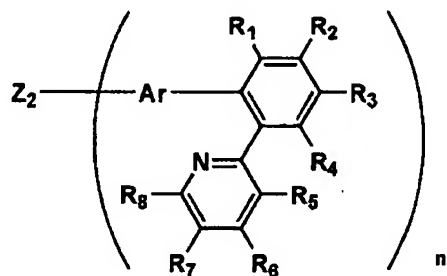
10

で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表し、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。また、Arは2価のアリーレン基を表し、R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>は各々水素原子または置換基を表す。R<sub>1</sub>～R<sub>8</sub>のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。]

【化 2 6】

20

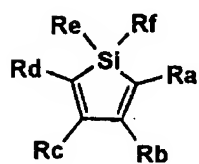
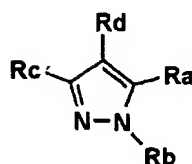
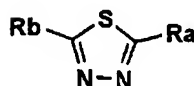
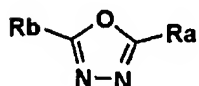
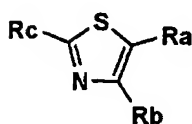
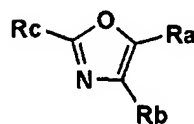
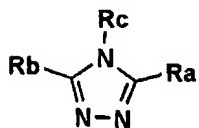
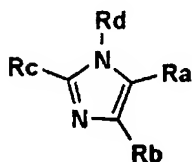
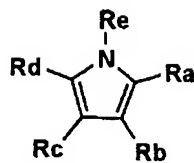
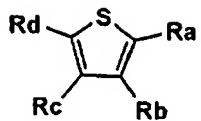
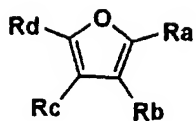
一般式(B2-3)



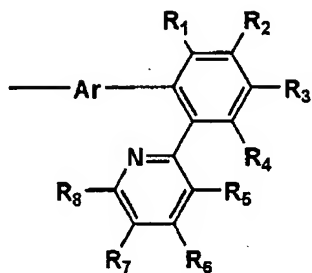
30

〔式中、Z<sub>2</sub>は

【化 2 7】

 $Z_2$ :

を表し、 $n$  は 2 以上 6 以下の置換基を表す。 $R_a \sim R_f$  のうち少なくとも 2 つは  
【化 2 8】

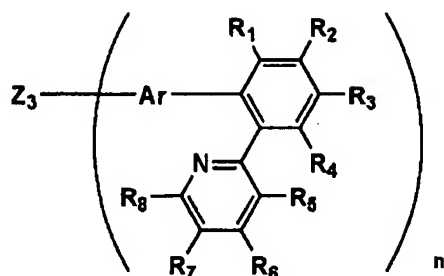


で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。 $R_a \sim R_f$  のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表し、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。また、 $Ar$  は 2 価のアリーレン基を表し、 $R_1 \sim R_8$  は各々水素原子または置換基を表す。 $R_1 \sim R_8$  のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。]



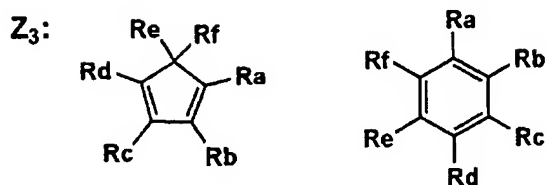
【化 2 9】

## 一般式(B2-4)



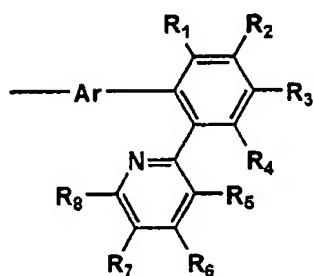
10

〔式中、 $Z_3$  は  
【化 3 0】



20

を表し、 $n$  は 2 以上 6 以下の置換基を表す。 $R_a \sim R_f$  のうち少なくとも 2 つは  
【化 3 1】



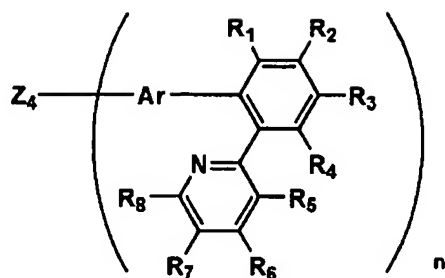
30

で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。 $R_a \sim R_f$  のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表し、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。また、 $Ar$  は 2 価のアリーレン基を表し、 $R_1 \sim R_8$  は各々水素原子または置換基を表す。 $R_1 \sim R_8$  のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。]

40

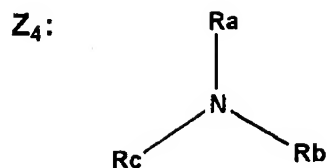
【化 3 2】

## 一般式(B2-5)



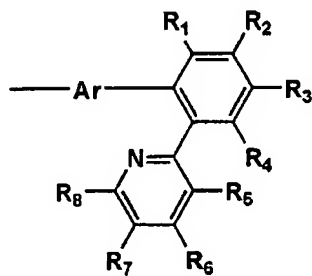
10

〔式中、 $Z_4$  は  
【化 3 3】



20

を表し、 $n$  は 2 または 3 を表す。 $R_a \sim R_c$  のうち少なくとも 2 つは  
【化 3 4】



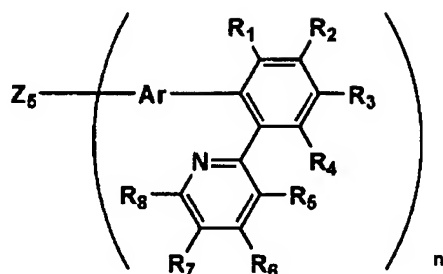
30

で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。 $R_a \sim R_c$  のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表す。また、 $Ar$  は 2 価のアリーレン基を表し、 $R_1 \sim R_8$  は各々水素原子または置換基を表す。 $R_1 \sim R_8$  のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。]

40

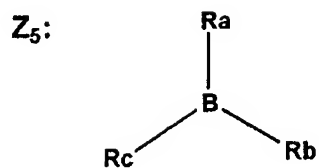
【化 3 5】

一般式(B2-6)



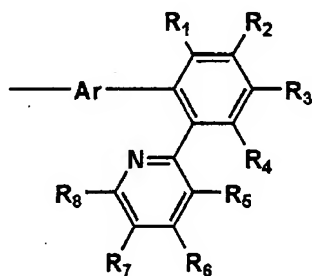
10

〔式中、Z<sub>5</sub> は  
【化 3 6】



20

を表し、nは2または3を表す。R<sub>a</sub> ~ R<sub>c</sub>のうち少なくとも2つは  
【化 3 7】



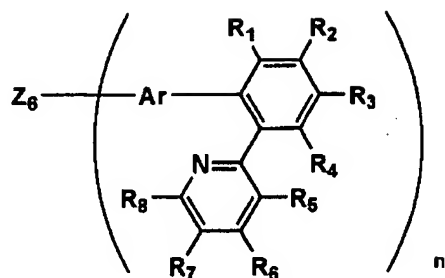
30

で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。R<sub>a</sub> ~ R<sub>c</sub>のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表す。また、Arは2価のアリーレン基を表し、R<sub>1</sub> ~ R<sub>8</sub>は各々水素原子または置換基を表す。R<sub>1</sub> ~ R<sub>8</sub>のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。]

40

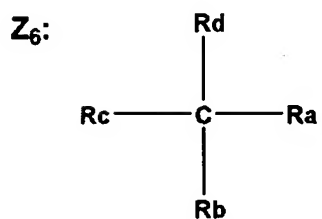
【化 3 8】

一般式(B2-7)



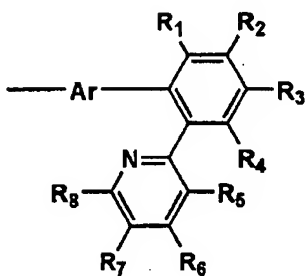
10

〔式中、 $Z_6$  は  
【化 3 9】



20

を表し、 $n$  は 2 または 3 を表す。 $R_a \sim R_d$  のうち少なくとも 2 つは  
【化 4 0】



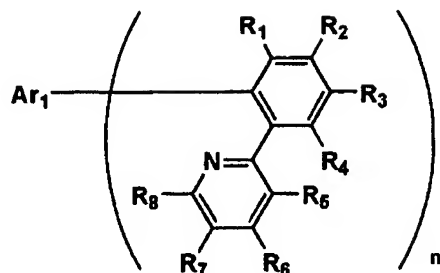
30

で表される置換基であり、複数の該置換基は同一であっても違っていてもよい。 $R_a \sim R_d$  のうち、該置換基でないものは、各々水素原子または任意の置換基を表し、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。また、 $Ar$  は 2 価のアリーレン基を表し、 $R_1 \sim R_8$  は各々水素原子または置換基を表す。 $R_1 \sim R_8$  のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。]

40

【化 4 1】

## 一般式(B2-8)



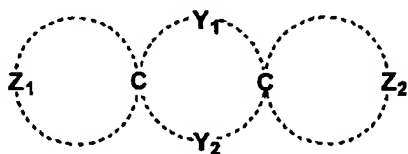
10

〔式中、 $Ar_1$  は  $m$  価のアリーレン基を表し、 $R_1 \sim R_8$  は各々水素原子または置換基を表す。 $n$  は 2 以上 6 以下の整数を表す。 $R_1 \sim R_8$  のうち、隣接する置換基同士は互いに縮合して環を形成してもよい。〕

【化 4 2】

20

## 一般式(B3-1)

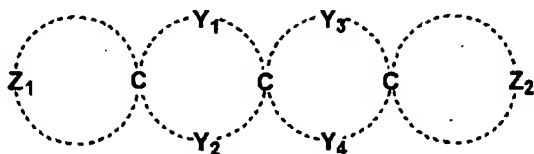


〔式中、 $C$  は炭素原子を表し、 $Y_1$  および  $Y_2$  は、各々独立に 2 個の炭素原子と共に 4 員環～8 員環を形成するのに必要な 2 価基を表し、 $Z_1$  および  $Z_2$  は、各々独立に炭素原子と共に 5 員環～8 員環を形成するのに必要な原子群を表す。尚、 $Z_1$  と炭素原子とで形成される 5 員環～8 員環及び  $Z_2$  と炭素原子とで形成される 5 員環～8 員環は、各々少なくとも一つの芳香族環を縮合環として有している。〕

30

【化 4 3】

## 一般式(B3-2)



40

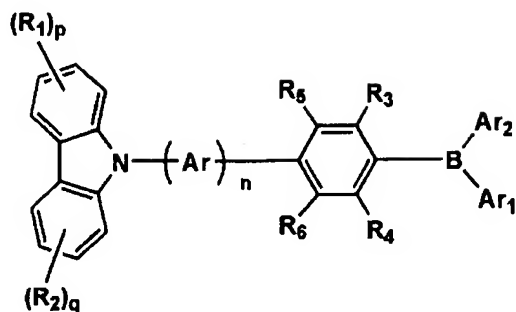
〔式中、 $C$  は炭素原子を表し、 $Y_1$  および  $Y_2$  は、各々独立に 2 個の炭素原子と共に 4 員環～8 員環を形成するのに必要な原子群または単なる結合手を表し、 $Y_3$  および  $Y_4$  は各々該  $Y_1$ 、 $Y_2$  と同義である。 $Z_1$  および  $Z_2$  は各々独立に炭素原子と共に 5 員環～8 員環を形成するのに必要な原子群を表す。尚、 $Z_1$  と炭素原子とで形成される 5 員環～8 員環及び  $Z_2$  と炭素原子とで形成される 5 員環～8 員環は、各々少なくとも一つの芳香族環

50

を縮合環として有している。]

【化 4 4】

一般式(B4-1)



10

(式中、 $R_1$  及び  $R_2$  はそれぞれ独立に置換基を表し、 $Ar$  は 2 価のアリーレン基を表し、 $n$  は 0 ~ 8 の整数を表し、 $p$  は 1 ~ 4 の整数を表し、 $q$  は 1 ~ 4 の整数を表す。 $p$  が 2 以上の整数を表す場合、複数の  $R_1$  は同一であっても異なってもよく、 $q$  が 2 以上の整数を表す場合、複数の  $R_2$  は同一であっても異なってもよい。 $p$  が 2 以上の場合で、かつ複数の  $R_1$  が隣接する場合は互いに縮合して環を形成していてもよく、 $q$  が 2 以上の場合で、かつ複数の  $R_2$  が隣接する場合は互いに縮合して環を形成していてもよく、さらに  $R_1$  と  $R_2$  とで環を形成してもよい。 $R_3 \sim R_6$  は水素原子または置換基を表し、 $R_3$  と  $R_5$  及び / または  $R_4$  と  $R_6$  とで環を形成してもよい。ただし、 $R_3$  または  $R_4$  の少なくとも一方は置換基を表す。 $Ar_1$  及び  $Ar_2$  はそれぞれ独立にアリーール基を表す。)

20

【化 4 5】

一般式(B5-1)

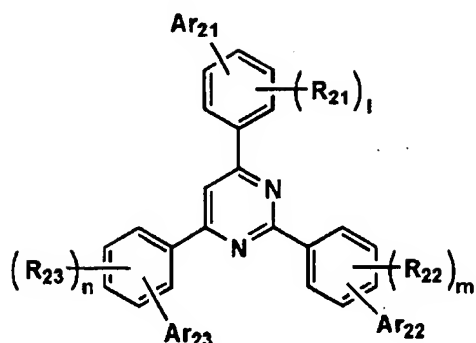


30

(式中、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$  及び  $R_{14}$  は水素原子又は一価の置換基を表し、少なくとも 1 つは炭素原子、酸素原子、硫黄原子又はケイ素原子を介して結合する置換基を表す。)

【化 4 6】

## 一般式(B5-2)



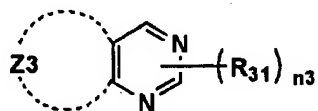
10

〔式中、 $Ar_{21}$ 、 $Ar_{22}$  及び  $Ar_{23}$  は芳香族基を表し、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$  及び  $R_{23}$  は一価の置換基を表す。1、m 及び n はそれぞれ 0～4 の整数を表す。〕

【化 4 7】

20

## 一般式(B5-3)

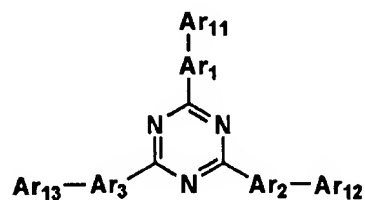


〔式中、 $R_{31}$  は水素原子又は一価の置換基を表し、 $n_3$  は 0～2 を表し、 $Z_3$  は 5 員環を形成するのに必要な原子群を表す。〕

【化 4 8】

30

## 一般式(B6-1)

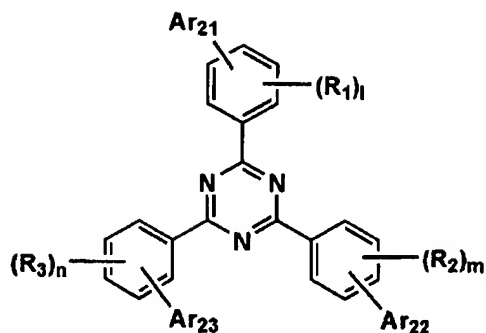


40

〔式中、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$  及び  $Ar_3$  は 6 員芳香族基を表し、 $Ar_{11}$ 、 $Ar_{12}$  及び  $Ar_{13}$  は 6 員芳香族基又は 5 員単環芳香族基を表す。〕

【化 4 9】

## 一般式(B6-2)



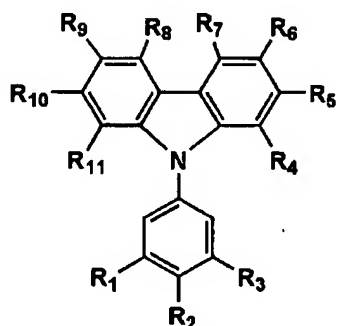
10

〔式中、 $Ar_{21}$ 、 $Ar_{22}$  及び  $Ar_{23}$  は、6 員芳香族基又は 5 員単環芳香族基を表し、 $R_1$ 、 $R_2$  及び  $R_3$  は一価の置換基を表す。1、m 及び n はそれぞれ 1 ~ 4 の整数を表す。〕

【化 5 0】

20

## 一般式(B7-1)

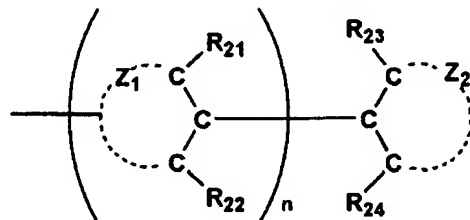


30

〔式中、 $R_1 \sim R_{11}$  は、各々水素原子または置換基を表す。但し、 $R_1 \sim R_3$  の少なくとも 1 つは下記一般式 (B7-2) で表される構造を有し、且つ、 $R_1 \sim R_3$  で表される置換基は互いに結合して環を形成しない。〕

【化 5 1】

## 一般式(B7-2)



40

〔式中、 $Z_1$ 、 $Z_2$  は芳香環を形成するのに必要な原子群、 $R_{21} \sim R_{24}$  は、各々水素

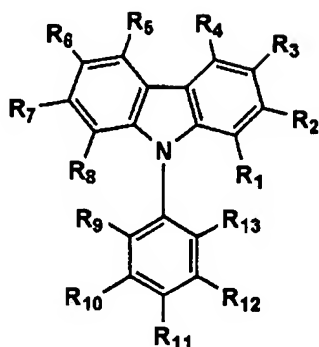
50



原子または置換基を表し、 $n$ は0または1を表し、 $n$ が0のとき、 $R_{23}$ または $R_{24}$ の少なくとも1つは置換基を表し、 $n$ が1のとき、 $R_{21} \sim R_{24}$ の少なくとも2つは置換基を表す。]

【化52】

### 一般式(B8-1)

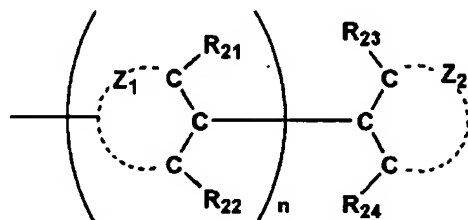


10

(式中、 $R_1 \sim R_{13}$ は水素原子または一価の置換基を表し、そのうち、 $R_1 \sim R_8$ の少なくとも1つは下記一般式(B8-1-1)に示す構造を有する。)

【化53】

### 一般式(B8-1-1)

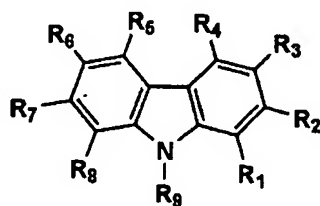


30

(式中、 $Z_1$ 、 $Z_2$ は芳香環を形成するのに必要な原子群、 $R_{21} \sim R_{24}$ は水素原子または一価の置換基を表し、 $n$ は0または1を表し、 $n$ が0のとき、 $R_{23}$ および $R_{24}$ の少なくとも1つは一価の置換基を表し、 $n$ が1のとき、 $R_{21} \sim R_{24}$ の少なくとも1つは一価の置換基を表す。]

【化54】

### 一般式(B9-1)



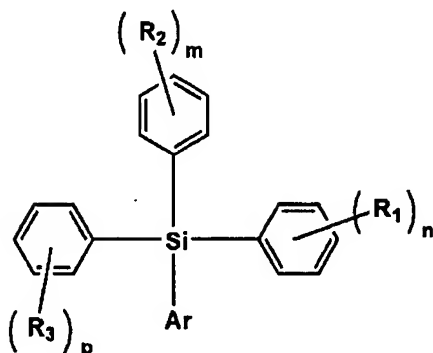
40

50

〔式中、 $R_1 \sim R_8$  は、各々水素原子、アルキル基、アリール基、アルキルオキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、複素環基または、シリル基を表し、 $R_9$  はアルキル基を表す。〕

【化 5 5】

一般式(B10-1)



10

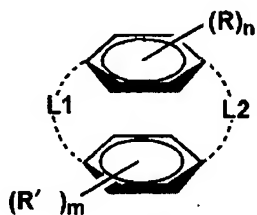
〔式中、 $R_1 \sim R_3$  はそれぞれ独立にアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、またはハロゲン原子を表し、 $n$  は 0 ～ 5 の整数を表し、 $m$  は 0 ～ 5 の整数を表し、 $p$  は 0 ～ 5 の整数を表し、 $Ar$  は縮合芳香族基を表す。〕

20

$n$  が複数でかつ複数の  $R_1$  が隣接する場合は、互いに縮合して環を形成してもよく、 $m$  が複数でかつ複数の  $R_2$  が隣接する場合は、互いに縮合して環を形成してもよく、 $p$  が複数でかつ複数の  $R_3$  が隣接する場合は、互いに縮合して環を形成してもよい。〕

【化 5 6】

一般式(B11-1)



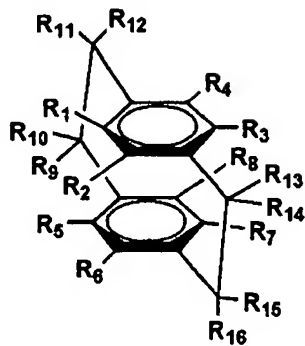
30

〔式中、 $R$  および  $R'$  はそれぞれ独立に置換基を表し、 $n$  は 0 ～ 4 の整数を表し、 $m$  は 0 ～ 4 の整数を表し、 $L1$  および  $L2$  はそれぞれ独立に 2 価の連結基を表す。 $n$  が 2 以上の整数を表す場合、複数の  $R$  は互いに縮合して環を形成してもよく、 $m$  が 2 以上の整数を表す場合、複数の  $R'$  は互いに縮合して環を形成してもよい。〕

40

【化 5 7】

## 一般式(B11-2)



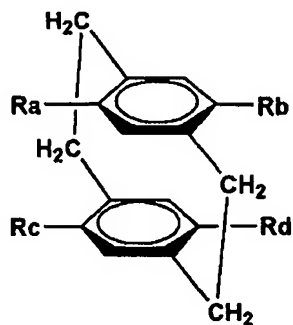
10

〔中、 $R_1 \sim R_8$  は水素原子または置換基を表し、 $R_9 \sim R_{16}$  は水素原子または置換基を表す。〕

【化 5 8】

20

## 一般式(B11-3)



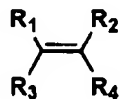
30

〔式中、 $R_a$ ,  $R_b$ ,  $R_c$  および  $R_d$  は水素原子または置換基を表し、そのうちの少なくとも一つはアリール基、アミノ基、アルケニル基またはアルキニル基を表す。〕

【化 5 9】

## 一般式(C1-1-1)

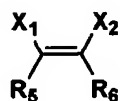
40



〔式中、 $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$ ,  $R_4$  は、水素原子、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基又はシアノ基を表し、 $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$ ,  $R_4$  の少なくとも一つの置換基は、アリール基、または、複素環基を表す。〕

【化 6 0】

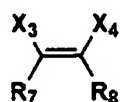
## 一般式(C1-1-2)



〔式中、 $\text{X}_1$ 、 $\text{X}_2$  はアリール基または、複素環基を表し、 $\text{R}_5$ 、 $\text{R}_6$  はアリール基、複素環基、または、脂環式炭化水素の残基を表し、かつ、 $\text{R}_5$ 、 $\text{R}_6$  のいずれか一方は脂環式炭化水素の残基を表す。 $\text{R}_5$ 、 $\text{R}_6$  は脂環式の環を形成してもよい。〕

【化 6 1】

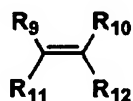
## 一般式(C1-1-3)



〔式中、 $\text{X}_3$ 、 $\text{X}_4$  はアリール基、または、複素環基を表し、 $\text{R}_7$ 、 $\text{R}_8$  はアリール基、複素環基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、または、ハロゲン原子を表し、かつ、 $\text{R}_7$ 、 $\text{R}_8$  のいずれか一方はアリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、または、ハロゲン原子を表す。〕

【化 6 2】

## 一般式(C1-2-1)



〔式中、 $\text{R}_9$ 、 $\text{R}_{10}$ 、 $\text{R}_{11}$ 、 $\text{R}_{12}$  は、水素原子、または、置換基を表し、 $\text{R}_9$ 、 $\text{R}_{10}$ 、 $\text{R}_{11}$ 、 $\text{R}_{12}$  の少なくとも一つの置換基は、下記一般式(2-2)で表される。〕

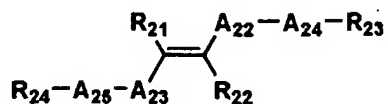
一般式(2-2)

\* -  $\text{A}_{20}$  -  $\text{A}_{21}$  -  $\text{R}_{20}$ 

〔式中、 $\text{A}_{20}$ 、 $\text{A}_{21}$  は単環の芳香族環、または、複素環を表し、 $\text{R}_{20}$  は水素原子、または、置換基を表し、\* は結合部位を表す。〕

【化 6 3】

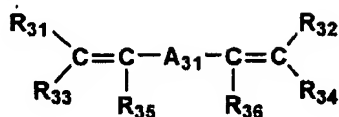
## 一般式(C1-2-3)



〔式中、 $A_{22}$ 、 $A_{23}$ 、 $A_{24}$ 、 $A_{25}$  は単環の芳香族環、または、複素環を表し、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$  は水素原子、または、置換基を表す。〕

【化64】

一般式(C1-3)

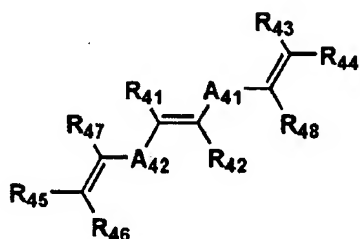


10

〔式中、 $A_{31}$  は芳香族環、または、複素環を表し、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{33}$ 、 $R_{34}$ 、 $R_{35}$ 、 $R_{36}$  は水素原子、または、置換基を表す。〕

【化65】

一般式(C1-4)



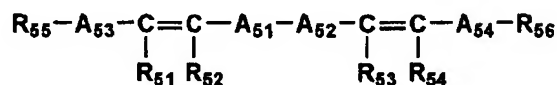
20

〔式中、 $A_{41}$ 、 $A_{42}$  は芳香族環、または、複素環を表し、 $R_{41}$ 、 $R_{42}$ 、 $R_{43}$ 、 $R_{44}$ 、 $R_{45}$ 、 $R_{46}$ 、 $R_{47}$ 、 $R_{48}$  は水素原子または置換基を表す。〕

【化66】

30

一般式(C1-5)

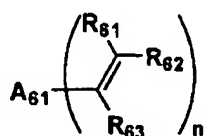


〔式中、 $A_{51}$ 、 $A_{52}$ 、 $A_{53}$ 、 $A_{54}$  は単環の芳香族環、または、複素環を表し、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ 、 $R_{53}$ 、 $R_{54}$ 、 $R_{55}$ 、 $R_{56}$  は水素原子、または、置換基を表す。〕

【化67】

40

一般式(C1-6)



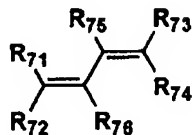
〔式中、 $A_{61}$  は芳香族基、または、複素環基を表し、 $R_{61}$ 、 $R_{62}$ 、 $R_{63}$  は水素原

50

子または置換基を表す。n は 3 ～ 6 の整数を表す。]

【化 6 8】

一般式(C1-7)

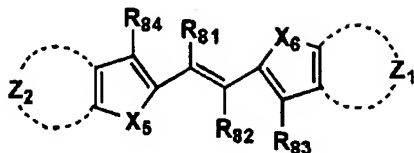


10

〔式中、 $R_{71}$ 、 $R_{72}$ 、 $R_{73}$ 、 $R_{74}$ 、 $R_{75}$ 、 $R_{76}$  は水素原子または置換基を表す。〕

【化 6 9】

一般式(C1-8-1)

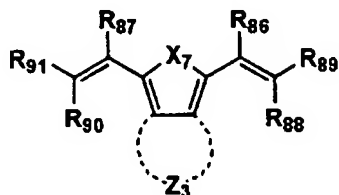


20

〔式中、 $Z_1$ 、 $Z_2$  は 5 員環と縮合環を形成する原子群であり、 $X_5$ 、 $X_6$  は、 $-S-$ 、 $-O-$ 、 $-NR_{85}-$ を表す。 $R_{81}$ 、 $R_{82}$ 、 $R_{83}$ 、 $R_{84}$ 、 $R_{85}$  は水素原子または置換基を表す。〕

【化 7 0】

一般式(C1-8-2)



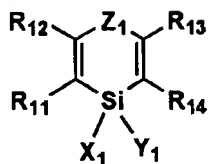
30

〔式中、 $Z_3$  は 5 員環と縮合環を形成する原子群であり、 $X_7$  は、 $-S-$ 、 $-O-$ 、 $-NR_{92}-$ を表す。 $R_{86}$ 、 $R_{87}$ 、 $R_{88}$ 、 $R_{89}$ 、 $R_{90}$ 、 $R_{91}$ 、 $R_{92}$  は水素原子または置換基を表す。〕

40

【化 7 1】

## 一般式(C2-1)

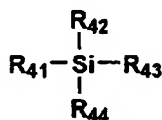


10

〔式中、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $X_1$  及び  $Y_1$  は水素原子または一価の置換基を表し、 $Z_1$  は  $CR_{15}R_{16}$ 、 $O$ 、 $S$ 、 $SiR_{17}R_{18}$  を表す。 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$  及び  $R_{18}$  は水素原子または一価の置換基を表す。〕

【化 7 2】

## 一般式(C2-4)

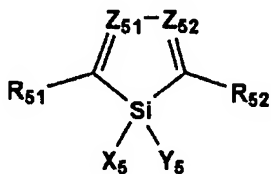


20

〔式中、 $R_{41}$ 、 $R_{42}$ 、 $R_{43}$  及び  $R_{44}$  は一価の置換基であり、少なくとも 1 個は芳香族基を表す〕

【化 7 3】

## 一般式(C2-5)



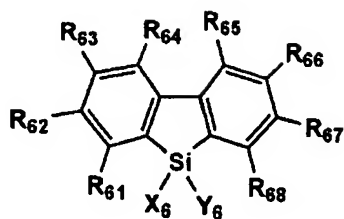
30

〔式中、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ 、 $X_5$  及び  $Y_5$  は水素原子または一価の置換基を表す。 $Z_{51}$  及び  $Z_{52}$  は窒素原子または  $CR_{53}$  を表し、 $R_{53}$  は水素原子または一価の置換基を表す。〕

40

【化 7 4】

## 一般式(C2-6)



10

〔式中、 $R_{61}$ 、 $R_{62}$ 、 $R_{63}$ 、 $R_{64}$ 、 $R_{65}$ 、 $R_{66}$ 、 $R_{67}$ 、 $R_{68}$ 、 $X_6$  及び  $Y_6$  は水素原子または一価の置換基を表す。〕

【化 7 5】

## 一般式(C2-7)



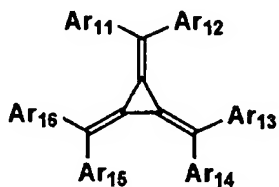
20

〔式中、 $R_{71}$ 、 $R_{72}$ 、 $R_{73}$ 、 $R_{74}$ 、 $X_7$  及び  $Y_7$  は水素原子または一価の置換基を表し、 $Z_7$  は  $CR_{75}R_{76}$ 、 $NR_{77}$ 、 $O$ 、 $S$ 、 $SiR_{78}R_{79}$  を表す。 $R_{75}$ 、 $R_{76}$ 、 $R_{77}$ 、 $R_{78}$  及び  $R_{79}$  は水素原子または一価の置換基を表す。〕

【化 7 6】

30

## 一般式(C3-1)



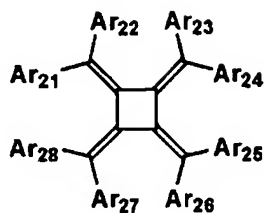
〔一般式 (C3-1) において、 $Ar_{11}$  乃至  $Ar_{16}$  は各々置換基を有していても良い芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表す。〕

40



【化 7 7】

## 一般式(C3-2)

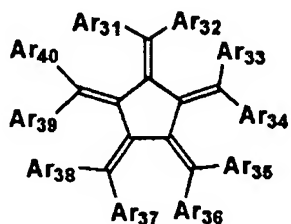


10

〔一般式 (C 3 - 2) において、A r <sub>2 1</sub> 乃至 A r <sub>2 8</sub> は各々置換基を有していても良い芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表す。〕

【化 7 8】

## 一般式(C3-3)

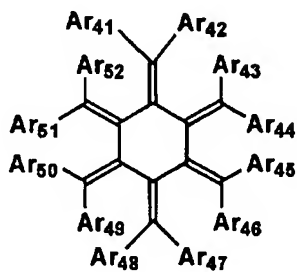


20

〔一般式 (C 3 - 3) において、A r <sub>3 1</sub> 乃至 A r <sub>4 0</sub> は各々置換基を有していても良い芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表す。〕

【化 7 9】

## 一般式(C3-4)

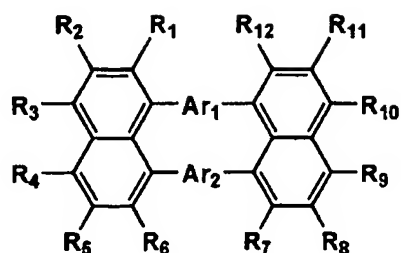


40

〔一般式 (C 3 - 4) において、A r <sub>4 1</sub> 乃至 A r <sub>5 2</sub> は各々置換基を有していても良い芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表す。〕

【化 8 0】

## 一般式(C4-1)

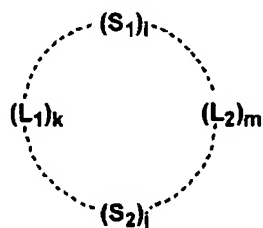


10

〔式中、 $A r_1$  及び  $A r_2$  はそれぞれ独立に 2 価の芳香族炭化水素群又は芳香族複素環群を表し、 $R_1 \sim R_{12}$  はそれぞれ独立に水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子を表す。〕

【化 8 1】

## 一般式(C5-1)



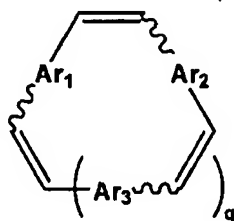
20

〔一般式 (C5-1) において、 $S_1$  及び  $S_2$  はスチリル基を表し、 $L_1$  及び  $L_2$  は 2 価の連結基を表し、 $i, j$  は 0 ~ 6 の整数を表し、 $k, m$  は 0、1 を表す。〕

30

【化 8 2】

## 一般式(C5-2)

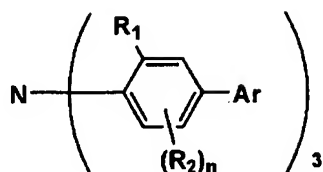


40

〔一般式 (C5-2) において、 $A r_1 \sim A r_3$  は置換または無置換の 2 価のアリーレン基を表し、 $q$  は 0 ~ 6 の整数を表す。〕

【化 8 3】

## 一般式(C6-I)

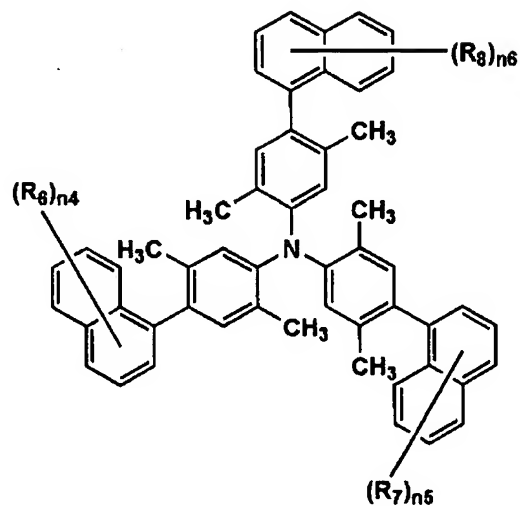


10

〔式中、R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> は各々置換基を表し、Ar は置換基を有していてもよい芳香族炭化水素環又は芳香族複素環基を表し、n は 0 から 3 の整数を表す。〕

【化 8 4】

## 一般式(C6-II)



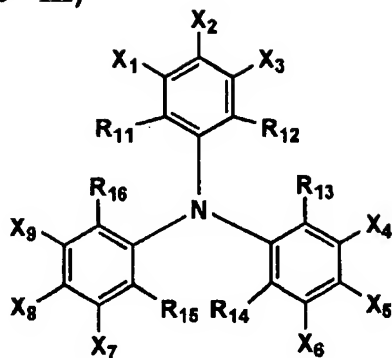
20

30

〔式中、一つ又は複数の R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub> 及び R<sub>8</sub> は各々アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ハロゲン、アルコキシ基、アリールオキシ基、複素環基の中から選ばれる置換基を表し、n<sub>4</sub>、n<sub>5</sub> 及び n<sub>6</sub> は各々 0 から 7 の整数を表す。〕

【化 8 5】

## 一般式(C6-III)



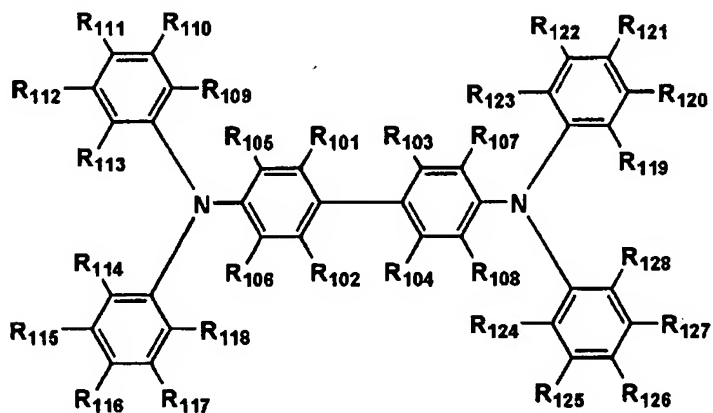
10

〔式中、 $R_{11} \sim R_{16}$  及び  $X_1 \sim X_9$  は水素原子又は置換基を表し、それぞれ異なっても同一でも良い。ただし、 $R_{11} \sim R_{16}$  のそれぞれの立体パラメータ  $E_{SR11} \sim E_{SR16}$  値の合計値は、 $E_{SR11} + E_{SR12} + E_{SR13} + E_{SR14} + E_{SR15} + E_{SR16} \leq -2.0$  を満たす。〕

20

【化 8 6】

## 一般式(C6-IV)



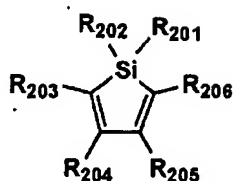
30

〔式中、 $R_{101} \sim R_{128}$  はそれぞれ水素原子、または、置換基を表し、 $R_{101} \sim R_{104}$  の少なくとも一つは置換基を表す。〕

40

【化 8 7】

## 一般式(C6-V)

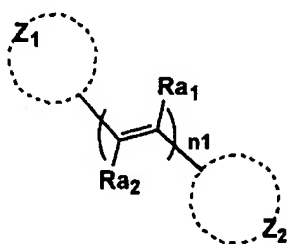


10

〔式中、 $R_{201} \sim R_{206}$  はそれぞれ水素原子、または、置換基を表す。〕

【化 8 8】

## 一般式(C7-1)



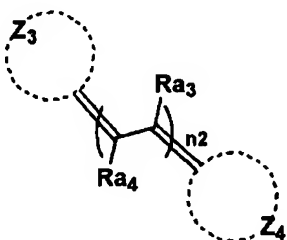
20

〔式中、 $Z_1$ 、 $Z_2$  は各々環を形成するに必要な原子群を表し、 $R_{a1}$ 、 $R_{a2}$  は水素原子または置換基であり、 $n1$  は 1 以上の整数である。ただし、 $Z_1$ 、 $Z_2$  のいずれか一方は、置換または無置換の、7～9 員の非共役環、または、ヘテロ原子を 2 個以上有する共役の 8 員環である。 $Z_1$ 、 $Z_2$  が置換基を有する場合、その置換基の  $\sigma_p$  は、 $-0.90$  以上  $0.50$  以下である。〕

30

【化 8 9】

## 一般式(C7-2)

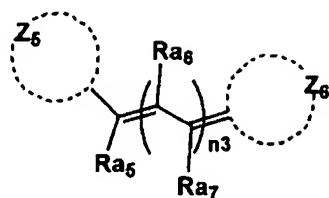


40

〔式中、 $Z_3$ 、 $Z_4$  は各々環を形成するに必要な原子群を表し、 $R_{a3}$ 、 $R_{a4}$  は水素原子または置換基であり、 $n2$  は 1 以上の整数である。ただし、 $Z_3$ 、 $Z_4$  のいずれか一方は、置換または無置換の、7～9 員の非共役環である。 $Z_3$ 、 $Z_4$  が置換基を有する場合、その置換基の  $\sigma_p$  は、 $-0.90$  以上  $0.50$  以下である。〕

【化 9 0】

## 一般式(C7-3)



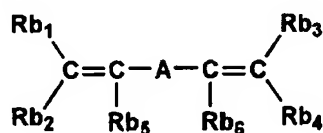
10

〔式中、 $Z_5$ 、 $Z_6$  は各々環を形成するに必要な原子群を表し、 $Ra_5$ 、 $Ra_6$ 、 $Ra_7$  は水素原子または置換基であり、 $n_3$  は 0 以上の整数である。ただし、 $Z_5$ 、 $Z_6$  のいずれか一方は、置換または無置換の、7～9 員の非共役環、または、 $Z_5$  がヘテロ原子を 2 個以上有する共役の 8 員環である。 $Z_5$ 、 $Z_6$  が置換基を有する場合、その置換基の  $\sigma_p$  は、 $-0.90$  以上  $0.50$  以下である。〕

【化 9 1】

20

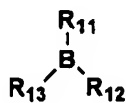
## 一般式(C7-4)



〔式中、 $A$  は置換または無置換の、7～9 員の非共役環、または、ヘテロ原子を 2 個以上有する共役の 8 員環である。 $Rb_1$ 、 $Rb_2$ 、 $Rb_3$ 、 $Rb_4$ 、 $Rb_5$ 、 $Rb_6$  は水素原子または置換基である。 $A$  が置換基を有する場合、その置換基の  $\sigma_p$  は、 $-0.90$  以上、 $0.50$  以下である。〕

【化 9 2】

## 一般式(C8-1)

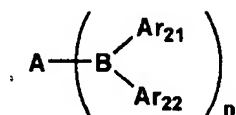


40

〔式中、 $B$  はホウ素原子を表し、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$  および  $R_{13}$  は一価の置換基を表す。但し、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$  および  $R_{13}$  の少なくとも 1 つは芳香族基を表す。〕

【化 9 3】

## 一般式(C8-2)

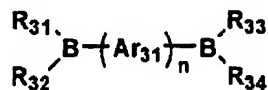


10

〔式中、Bはホウ素原子を表し、 $Ar_{21}$  および  $Ar_{22}$  は芳香族基を表し、Aは2～15価の基を表し、nは2～15の整数を表す。〕

【化 9 4】

## 一般式(C8-3)

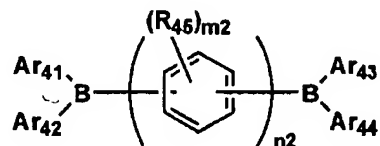


20

〔式中、Bはホウ素原子を表し、 $Ar_{31}$  は単環の芳香族基を表し、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{33}$  および  $R_{34}$  は一価の置換基を表す。nは1～5の整数を表す。〕

【化 9 5】

## 一般式(C8-4)



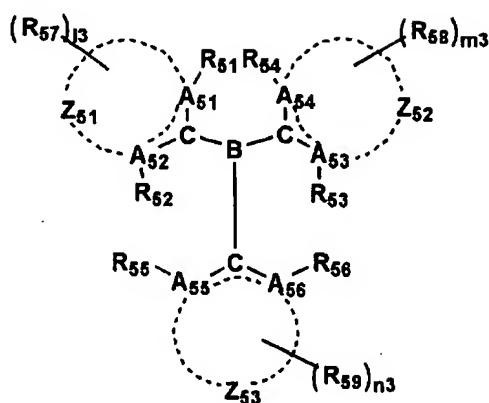
30

〔式中、Bはホウ素原子を表し、 $Ar_{41}$ 、 $Ar_{42}$ 、 $Ar_{43}$  および  $Ar_{44}$  は芳香族基を表し、 $R_{45}$  は水素原子または一価の置換基を表す。n2は2～5の整数を表し、m2は0～4の整数を表す。〕

40

【化 9 6】

## 一般式(C8-5)



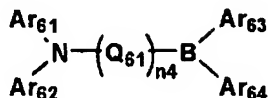
10

〔式中、Bはホウ素原子を表し、Cは炭素原子を表し、A<sub>51</sub>、A<sub>52</sub>、A<sub>53</sub>、A<sub>54</sub>、A<sub>55</sub>およびA<sub>56</sub>は炭素原子または窒素原子を表し、Z<sub>51</sub>、Z<sub>52</sub>およびZ<sub>53</sub>は芳香族環を形成するのに必要な原子群を表し、R<sub>51</sub>、R<sub>52</sub>、R<sub>53</sub>、R<sub>54</sub>、R<sub>55</sub>およびR<sub>56</sub>はそれぞれ独立に水素原子または一価の置換基を表し、R<sub>51</sub>～R<sub>56</sub>のうち、少なくとも4つは置換基を表す。R<sub>57</sub>、R<sub>58</sub>およびR<sub>59</sub>はそれぞれ独立に水素原子または一価の置換基を表し、13、n3およびm3はそれぞれ独立に0～7の整数を表す。〕

20

【化 9 7】

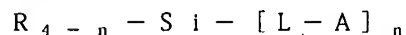
## 一般式(C8-6)



30

〔式中、Ar<sub>61</sub>、Ar<sub>62</sub>、Ar<sub>63</sub>およびAr<sub>64</sub>は各々独立に置換又は無置換の芳香族基を表し、Q<sub>61</sub>は芳香族基を表し、n4は1～5の整数を表す。〕

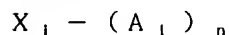
## 一般式(C9-1)



〔式中、Rは水素または1価の置換基を表し、Lは2価の連結基を表し、Aはカルバゾール環の活性部位にフェニル基以外の置換基を有するカルバゾール誘導体残基を表し、nは3または4を表す。複数のL、Aはそれぞれ同一でも異なってもよい。〕

40

## 一般式(C10-1)

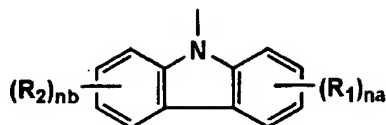


〔式中、A<sub>1</sub>は下記一般式(C10-2)で表され、同一でも異なってもよい。X<sub>1</sub>は非芳香族系の環状連結基である。nは1～4の整数を表す。〕



【化 9 8】

## 一般式(C10-2)

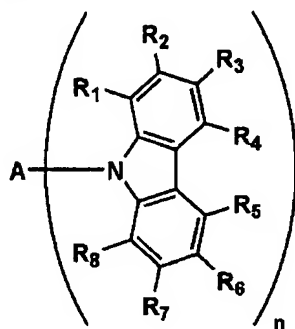


10

〔式中、 $R_1$ 、 $R_2$  は各々独立に水素原子または置換基を表し、 $n_a$ 、 $n_b$  は 0 ～ 4 の整数を表す。〕

【化 9 9】

## 一般式(C11-1)

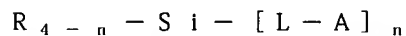


20

〔式中、 $A$  は置換されていてもよい芳香環残基を表し、 $R_1 \sim R_8$  は水素原子または置換基を表す。 $R_1 \sim R_8$  が同時に水素原子であることはなく、少なくとも 1 つは置換基を有する。 $n$  は自然数を表し、 $n$  が 2 以上の場合、複数のカルバゾール誘導体残基は同じでも異なってもよい。〕

30

一般式 (C12-1)

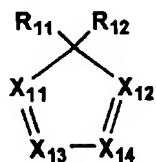


〔式中、 $R$  は水素原子又は置換基を表し、 $L$  は単なる結合手又は置換基を有さないフェニレン基を表し、 $A$  はカルバゾール残基を表し、 $L$  との結合部位がカルバゾール骨格の  $N$  位である場合は、カルバゾール残基の少なくとも一つ以上の置換箇所に、それぞれ置換基を有してもよいアルキル基（ただし、カルバゾール環の 2 位と 7 位に置換する場合は  $t$ -ブチル基であることはない）、アルキルオキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基若しくは複素環基又は置換基を有するフェニル基又はアミノ基が置換されている。また、 $L$  との結合がカルバゾール骨格の  $N$  位以外である場合は、 $N$  位にはそれぞれ置換基を有してもよい分岐アルキル基、アルキルオキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基若しくは複素環基又は置換フェニル基又はアミノ基が置換されている。 $n$  は 3 又は 4 の整数を表す。なお、複数の  $A$  は同じでも異なってもよい。〕

40

【化 1 0 0】

## 一般式(D1-1)

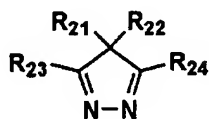


10

〔式中、 $X_{11}$ 、 $X_{12}$ 、 $X_{13}$ 、 $X_{14}$  は C-Ra または N を表し、 $X_{11}$ 、 $X_{12}$ 、 $X_{13}$ 、 $X_{14}$  の少なくとも一つは N を表す。Ra は水素原子または置換基を、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$  は置換基を表す。〕

【化 1 0 1】

## 一般式(D1-2)

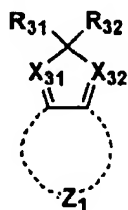


20

〔式中、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$  は置換基を表す。 $R_{23}$ 、 $R_{24}$  は水素原子または置換基を表す。〕

【化 1 0 2】

## 一般式(D1-3)



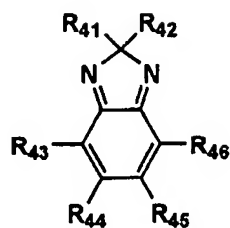
30

〔式中、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$  は置換基を表す。 $X_{31}$ 、 $X_{32}$  は C-Rb または N を表し、 $X_{31}$  または  $X_{32}$  の少なくとも一つは N を表す。 $Z_1$  は環を形成するのに必要な原子群を表す。Rb は水素原子または置換基を表す。〕

40

【化 1 0 3】

## 一般式(D1-4)



10

〔式中、 $R_{41}$ 、 $R_{42}$  は置換基を表す。 $R_{43}$ 、 $R_{44}$ 、 $R_{45}$ 、 $R_{46}$  は水素原子または置換基を表す。〕

一般式(D1-5)

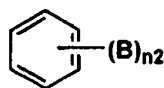
 $Ar-(A)_{n1}$ 

〔式中、 $Ar$  は芳香族環を表し、 $A$  は非共役の複素環を表し、 $n1$  は 2～6 の整数を表す。〕

【化 1 0 4】

20

## 一般式(D1-6)

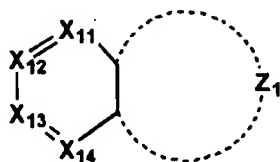


〔式中、 $B$  は非共役の複素環を表し、 $n2$  は 2～6 の整数を表す。〕

【化 1 0 5】

30

## 一般式(D2-1)

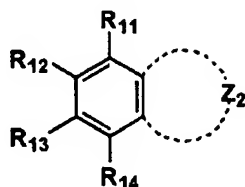


〔式中、 $X_{11} \sim X_{14}$  は、各々  $C-Ra$  又は窒素原子を表す。 $Ra$  は水素原子又は置換基を表す。 $Z_1$  は非共役な 7 員環を形成するのに必要な原子群を表す。〕

40

【化 1 0 6】

## 一般式(D2-2)

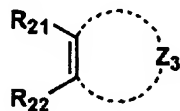


10

〔式中、 $R_{11} \sim R_{14}$  は、各々水素原子又は置換基を表す。 $Z_2$  は非共役な 7 員環を形成するのに必要な原子群を表す。〕

【化 1 0 7】

## 一般式(D2-3)

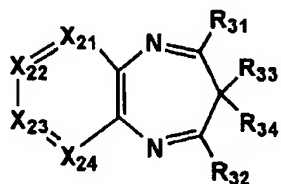


20

〔式中、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$  は、各々  $\sigma p$  が  $-0.5$  以上、 $0.0$  以下の置換基を表す。 $Z_3$  は非共役な 7 員環を形成するのに必要な原子群を表す。〕

【化 1 0 8】

## 一般式(D2-4)



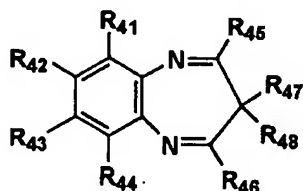
30

〔式中、 $X_{21} \sim X_{24}$  は、各々  $C-Rb$  又は窒素原子を表す。 $Rb$ 、 $R_{31} \sim R_{34}$  は、各々水素原子又は置換基を表す。〕

【化 1 0 9】

40

## 一般式(D2-5)

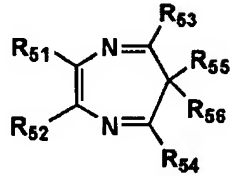


50

〔式中、 $R_{41} \sim R_{48}$  は、各々水素原子又は置換基を表す。〕

【化110】

一般式(D2-6)



10

〔式中、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$  は、各々  $\sigma_p$  が  $-0.5$  以上、 $0.0$  以下の置換基を表す。 $R_{53} \sim R_{56}$  は、各々水素原子又は置換基を表す。〕

一般式(D3-1)

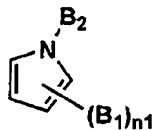
$A_1 - (B_0) - A_2$

〔式中、 $A_1$  と  $A_2$  は以下の一般式(A)から(G)で表される部分構造から選ばれる基であり、同一でも異なっても良い。 $B_0$  は炭素原子数を少なくとも7個以上有する二価の連結基である。〕

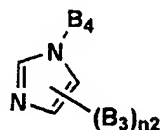
【化111】

20

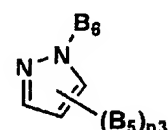
一般式(A)



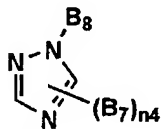
一般式(B)



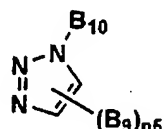
一般式(C)



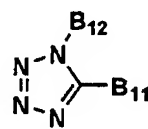
一般式(D)



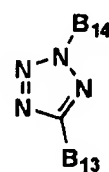
一般式(E)



一般式(F)



一般式(G)



30

〔式中、一般式(A)において、 $B_1$  と  $B_2$  の中のいずれか一つが、 $B_0$  に相当し、その他は一価の置換基である。 $n_1$  は0から4の整数である。 40

式中、一般式(B)において、 $B_3$  と  $B_4$  の中のいずれか一つが、 $B_0$  に相当し、その他は一価の置換基である。 $n_2$  は0から3の整数である。

式中、一般式(C)において、 $B_5$  と  $B_6$  の中のいずれか一つが、 $B_0$  に相当し、その他は一価の置換基である。 $n_3$  は0から3の整数である。

式中、一般式(D)において、 $B_7$  と  $B_8$  の中のいずれか一つが、 $B_0$  に相当し、その他は一価の置換基である。 $n_4$  は0から2の整数である。

式中、一般式(E)において、 $B_9$  と  $B_{10}$  の中のいずれか一つが、 $B_0$  に相当し、その他は一価の置換基である。 $n_5$  は0から2の整数である。

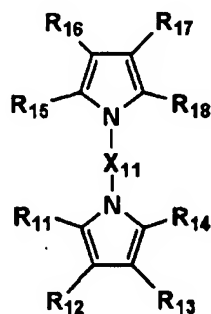
式中、一般式(F)において、 $B_{11}$  と  $B_{12}$  の中のいずれか一方が、 $B_0$  に相当し、一 50

方は一価の置換基である。

式中、一般式 (G) において、 $B_{13}$  と  $B_{14}$  の中のいずれか一方が、 $B_0$  に相当し、一方は一価の置換基である。なお、一般式 (A) ~ (E) において、一価の置換基はそれぞれ互いに縮合して環を形成することはない。]

【化 1 1 2】

### 一般式(D3-2)



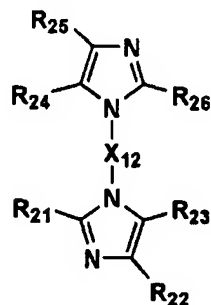
10

[式中、 $X_{11}$  は炭素原子数を少なくとも 13 個以上有する二価の基を表す。 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$  又は  $R_{18}$  は、水素原子、又は置換基を表す。ただし、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$  又は  $R_{18}$  は、それぞれ互いに縮合して環を形成することはない。]

20

【化 1 1 3】

### 一般式(D3-3)



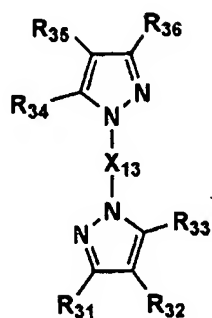
30

[式中、 $X_{12}$  は炭素原子数を少なくとも 13 個以上有する二価の基を表す。 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$ 、 $R_{25}$  又は  $R_{26}$  は、水素原子、又は置換基を表す。ただし、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$ 、 $R_{25}$  又は  $R_{26}$  は、それぞれ互いに縮合して環を形成することはない。]

40

【化 1 1 4】

## 一般式(D3-4)



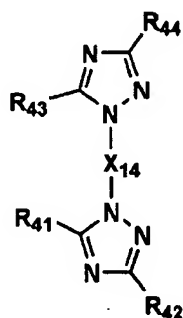
10

〔式中、X<sub>13</sub> は二価の連結基を表す。R<sub>31</sub>、R<sub>32</sub>、R<sub>33</sub>、R<sub>34</sub>、R<sub>35</sub> 又は R<sub>36</sub> は、水素原子、又は置換基を表す。ただし、R<sub>31</sub>、R<sub>32</sub>、R<sub>33</sub>、R<sub>34</sub>、R<sub>35</sub> 又は R<sub>36</sub> は、それぞれ互いに縮合して環を形成することはない。〕

【化 1 1 5】

20

## 一般式(D3-5)

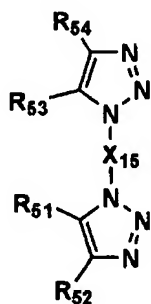


30

〔式中、X<sub>14</sub> は二価の基を表す。R<sub>41</sub>、R<sub>42</sub>、R<sub>43</sub> 又は R<sub>44</sub> は、水素原子、又は置換基を表す。ただし、R<sub>41</sub>、R<sub>42</sub>、R<sub>43</sub> 又は R<sub>44</sub> は、それぞれ互いに縮合して環を形成することはない。〕

【化 1 1 6】

## 一般式(D3-6)



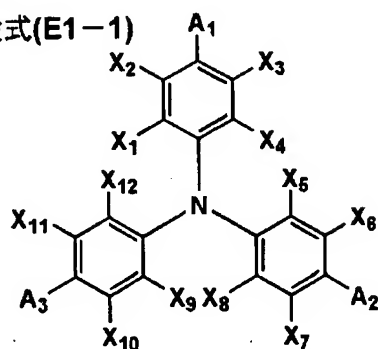
10

〔式中、 $X_{15}$  は二価の基を表す。 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ 、 $R_{53}$  又は  $R_{54}$  は、水素原子、又は置換基を表す。ただし、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ 、 $R_{53}$  又は  $R_{54}$  は、それぞれ互いに縮合して環を形成することはない。〕

【化 1 1 7】

20

## 一般式(E1-1)



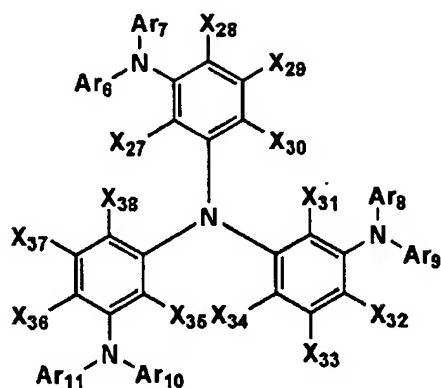
30

〔式中、 $X_1 \sim X_{12}$  は水素原子又は置換基を表し各々異なっても同一でも良く、 $X_1$ 、 $X_4$ 、 $X_5$ 、 $X_8$ 、 $X_9$  及び  $X_{12}$  のうち少なくとも一つは置換基を表す。 $A_1 \sim A_3$  は置換又は無置換の芳香族炭化水素基を表し、各々異なっても同一でも良い。〕



【化 1 1 8】

## 一般式(E1-5)



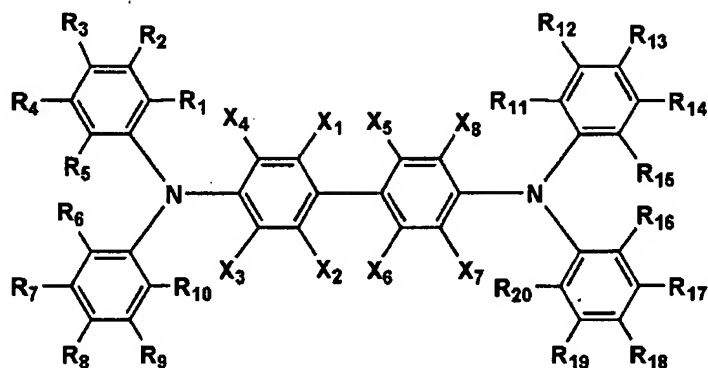
10

〔式中、 $X_{27} \sim X_{38}$  は水素原子又は置換基を表し、各々異なっても同一でも良い。  
 $Ar_6 \sim Ar_{11}$  は置換又は無置換の芳香族炭化水素基を表し、各々異なっても同一でも良い。〕

【化 1 1 9】

20

## 一般式(E2-1)

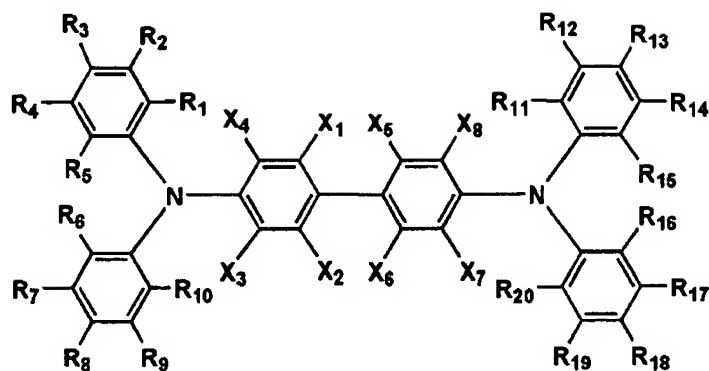


30

〔式中、 $X_1$  乃至  $X_8$ 、及び  $R_1$  乃至  $R_{20}$  は各々水素原子又は置換基を表し、各々異なっても同一でも良く、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_5$  及び  $X_6$  のうち少なくとも1つは置換基を表す。〕

【化 1 2 0】

## 一般式(E2-5)



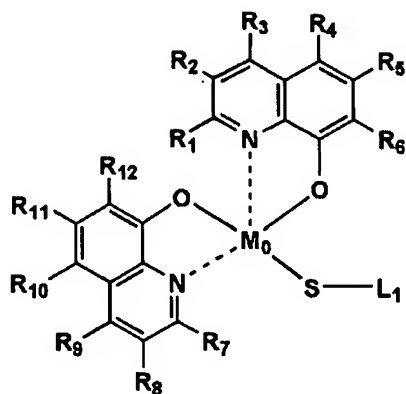
10

〔式中、 $X_1$  乃至  $X_8$ 、及び  $R_1$  乃至  $R_{20}$  は各々水素原子又は置換基を表し、各々異なっているいても同一でも良く、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_5$  及び  $X_6$  のそれぞれの立体パラメータ  $EsX_1$ 、 $EsX_2$ 、 $EsX_5$  及び  $EsX_6$  の合計値 ( $EsX_1 + EsX_2 + EsX_5 + EsX_6$ ) が  $-2.5$  以下である。〕

20

【化 1 2 1】

## 一般式(F1-1)

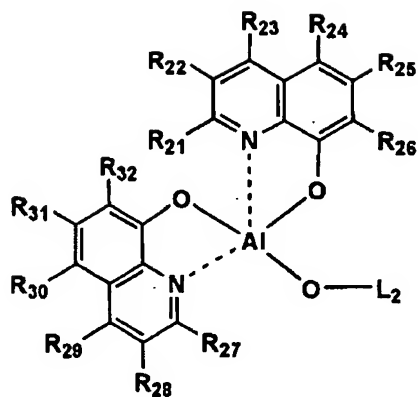


30

〔式中、 $M_0$  はインジウム又はガリウムを表し、 $R_1 \sim R_{12}$  は、水素原子又は置換基を表し、 $L_1$  は水素原子又は置換基を表す。〕

【化 1 2 2】

## 一般式(F1-2)

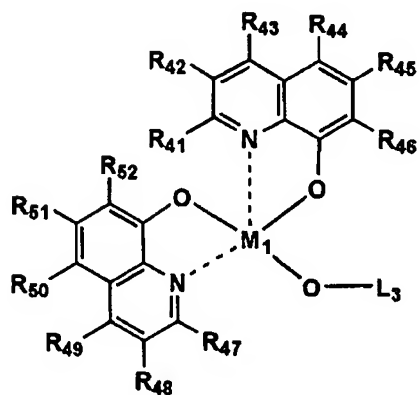


10

〔式中、R<sub>21</sub> ~ R<sub>32</sub> は水素原子又は置換基を表し、L<sub>2</sub> は複素環基を表す。〕

【化 1 2 3】

## 一般式(F1-3)



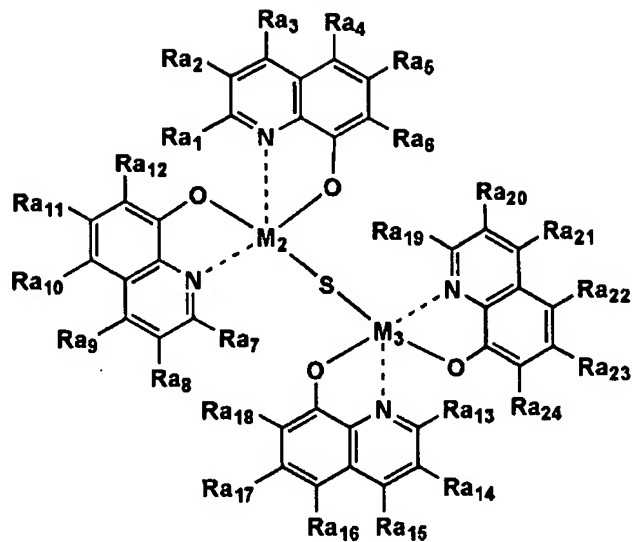
20

30

〔式中、M<sub>1</sub> はガリウム、インジウムを表し、R<sub>41</sub> ~ R<sub>52</sub> は水素原子又は置換基を表し、L<sub>3</sub> は複素環基を表す。〕

【化 1 2 4】

## 一般式(F1-4)



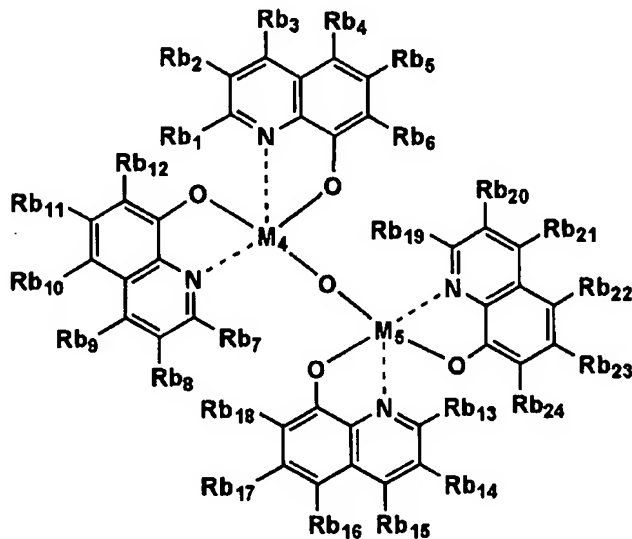
10

20

〔式中、 $M_2$ 、 $M_3$  はアルミニウム、インジウム又はガリウムを表し、 $Ra_1 \sim Ra_{24}$  は水素原子又は置換基を表す。〕

【化 1 2 5】

## 一般式(F1-5)



30

40

〔式中、 $M_4$ 、 $M_5$  はインジウム又はガリウムを表し、 $Rb_1 \sim Rb_{24}$  は水素原子又は置換基を表す。〕

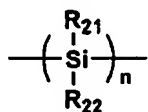
【請求項 2】

少なくとも 1 つの層に、下記一般式 (C 2-2) または (C 2-3) で表される構造単位を有するポリシランを含有し、かつ発光が実質白色であることを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

50

【化 1 2 6】

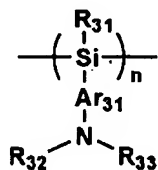
## 一般式(C2-2)



〔式中、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$  はそれぞれ独立に、アルキル基、芳香族基、アルコキシ基またはアリールオキシ基を表し、 $n$  は 3 以上の整数を表す。〕

【化 1 2 7】

## 一般式(C2-3)



20

〔式中、 $R_{31}$  はアルキル基、芳香族基、アルコキシ基またはアリールオキシ基を表し、 $R_{32}$ 、 $R_{33}$  はそれぞれ独立にアルキル基、芳香族基を表し、 $\text{Ar}_{31}$  はアリーレン基を表し、 $n$  は 3 以上の整数を表す。〕

【請求項 3】

少なくとも 1 つの層に、分子中の窒素原子数と炭素原子数の比 ( $N/C$ ) が、0 以上 0.05 以下である蛍光性化合物を含有し、かつ発光が実質白色であることを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 4】

30

少なくとも 1 つの層に、蛍光極大波長が 415 nm 以下、分子量が 500 ~ 2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比 ( $F/(H+F)$ ) が 0 ~ 0.9 である蛍光性化合物を含有し、かつ発光が実質白色であることを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】

前記、一般式 (A1-1) ~ (A1-6)、一般式 (A2-1) ~ (A2-7)、一般式 (B1-1)、一般式 (B1-6)、一般式 (B1-11)、一般式 (B1-13)、一般式 (B2-1) ~ (B2-8)、一般式 (B3-1) ~ (B3-2)、一般式 (B4-1)、一般式 (B5-1) ~ (B5-3)、一般式 (B6-1) ~ (B6-2)、一般式 (B7-1)、一般式 (B8-1)、一般式 (B9-1)、一般式 (B10-1)、一般式 (B11-1) ~ (B11-3)、一般式 (C1-1-1)、(C1-1-2)、(C1-1-3)、一般式 (C1-2-1)、(C1-2-3)、一般式 (C1-3) ~ (C1-7)、一般式 (C1-8-1)、(C1-8-2)、一般式 (C2-1)、一般式 (C2-4) ~ (C2-7)、一般式 (C3-1) ~ (C3-4)、一般式 (C4-1)、一般式 (C5-1) ~ (C5-2)、一般式 (C6-1) ~ (C6-V)、一般式 (C7-1) ~ (C7-4)、一般式 (C8-1) ~ (C8-6)、一般式 (C9-1)、一般式 (C10-1)、一般式 (C11-1)、一般式 (C12-1)、一般式 (D1-1) ~ (D1-6)、一般式 (D2-1) ~ (D2-6)、一般式 (D3-1) ~ (D3-6)、一般式 (E1-1)、一般式 (E1-5)、一般式 (E2-1) 及び (E2-5) でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも 1 種の化合物を、少なくとも発光層、

40

50

正孔輸送層、電子輸送層のいずれか1層に含有することを特徴とする請求項1に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】

前記、一般式(A1-1)～(A1-6)、一般式(A2-1)～(A2-7)、一般式(B1-1)、一般式(B1-6)、一般式(B1-11)、一般式(B1-13)、一般式(B2-1)～(B2-8)、一般式(B3-1)、(B3-2)、一般式(B4-1)、一般式(B5-1)～(B5-3)、一般式(B6-1)、(B6-2)、一般式(B7-1)、一般式(B8-1)、一般式(B9-1)、一般式(B10-1)、一般式(B11-1)～(B11-3)、一般式(C1-1-1)、(C1-1-2)、(C1-1-3)、一般式(C1-2-1)、(C1-2-3)、一般式(C1-3)～(C1-7)、一般式(C1-8-1)、(C1-8-2)、一般式(C2-1)、一般式(C2-4)～(C2-7)、一般式(C3-1)～(C3-4)、一般式(C4-1)、一般式(C5-1)、(C5-2)、一般式(C6-1)～(C6-V)、一般式(C7-1)～(C7-4)、一般式(C8-1)～(C8-6)、一般式(C9-1)、一般式(C10-1)、一般式(C11-1)、一般式(C12-1)、一般式(D1-1)～(D1-6)、一般式(D2-1)～(D2-6)および一般式(D3-1)～(D3-6)でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を、少なくとも発光層、電子輸送層のいずれか1層に含有することを特徴とする請求項1または5に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

【請求項7】

前記、一般式(A1-1)～(A1-6)、一般式(A2-1)～(A2-7)、一般式(B1-1)、一般式(B1-6)、一般式(B1-11)、一般式(B1-13)、一般式(B2-1)～(B2-8)、一般式(B3-1)、(B3-2)、一般式(B4-1)、一般式(B5-1)～(B5-3)、一般式(B6-1)、(B6-2)、一般式(B7-1)、一般式(B8-1)、一般式(B9-1)、一般式(B10-1)、一般式(B11-1)～(B11-3)、一般式(C1-1-1)、(C1-1-2)、(C1-1-3)、一般式(C1-2-1)、一般式(C1-2-3)、一般式(C1-3)～(C1-7)、一般式(C1-8-1)、(C1-8-2)、一般式(C2-1)、一般式(C2-4)～(C2-7)、一般式(C3-1)～(C3-4)、一般式(C4-1)、一般式(C5-1)、(C5-2)、一般式(C6-1)～(C6-V)、一般式(C7-1)～(C7-4)、一般式(C8-1)～(C8-6)、一般式(C9-1)、一般式(C10-1)、一般式(C11-1)、一般式(C12-1)、一般式(D1-1)～(D1-6)、一般式(D2-1)～(D2-6)、一般式(D3-1)～(D3-6)でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を、少なくとも発光層に含有することを特徴とする請求項1、5または6に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

30

【請求項8】

前記一般式(C2-2)、(C2-3)で表される構造単位を有するポリシラン、前記分子中の窒素原子数と炭素原子数の比(N/C)が、0以上0.05以下である蛍光性化合物、または、蛍光極大波長が415nm以下、分子量が500～2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比(F/(H+F))が0～0.9である蛍光性化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を、少なくとも発光層、正孔輸送層、電子輸送層のいずれか1層に含有することを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

【請求項9】

前記一般式(C2-2)または(C2-3)で表される構造単位を有するポリシラン、前記分子中の窒素原子数と炭素原子数の比(N/C)が、0以上0.05以下である蛍光性化合物、または、蛍光極大波長が415nm以下、分子量が500～2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比(F/(H+F))が0～0.9である蛍光性化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を、発光層、電子輸送層のいずれ

50

か1層に含有することを特徴とする請求項8に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項10】

前記一般式(C2-2)または(C2-3)で表される構造単位を有するポリシラン、前記分子中の窒素原子数と炭素原子数の比(N/C)が、0以上0.05以下である蛍光性化合物、または、蛍光極大波長が415nm以下、分子量が500~2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比(F/(H+F))が0~0.9である蛍光性化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を、発光層に含有することを特徴とする請求項8に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項11】

前記、一般式(E1-1)、一般式(E1-5)、一般式(E2-1)および一般式(E2-5)でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種を正孔輸送層に含有することを特徴とする請求項1に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項12】

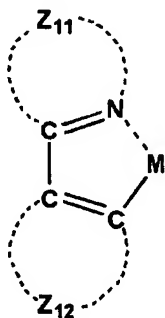
前記、一般式(D1-1)~(D1-6)、一般式(D2-1)~(D2-6)、一般式(D3-1)~(D3-6)および一般式(F1-1)~(F1-5)でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種を正孔阻止層に含有することを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項13】

下記一般式一般式(G1-1)~(G1-5)でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種を燐光性ドーパントとして発光層に含有することを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化128】

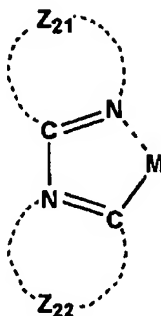
一般式(G1-1)



〔式中、Cは炭素原子、Nは窒素原子を表し、Z<sub>11</sub>は炭素原子および窒素原子とともに芳香族環を形成するのに必要な原子群を表し、Z<sub>12</sub>は炭素原子とともに非芳香族環を形成するのに必要な原子群を表し、Mは金属を表す。〕

【化 1 2 9】

## 一般式(G1-2)

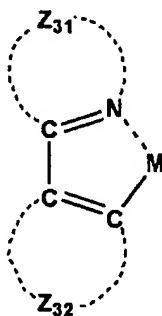


10

〔式中、Cは炭素原子、Nは窒素原子を表し、 $Z_{21}$  および  $Z_{22}$  は、それぞれ炭素原子および窒素原子とともに芳香環を形成するのに必要な原子群を表し、Mは金属を表す。〕

【化 1 3 0】

## 一般式(G1-3)



20

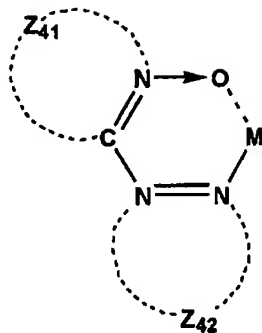
30

〔式中、Cは炭素原子、Nは窒素原子を表し、 $Z_{31}$  は炭素原子および窒素原子とともに芳香族環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Z_{32}$  は炭素原子とともに5員芳香族環を形成するのに必要な炭素原子、窒素原子または酸素原子により構成される原子群を表し、Mは金属を表す。〕



【化 1 3 1】

## 一般式(G1-4)



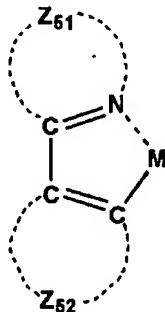
10

〔式中、Cは炭素原子、Nは窒素原子を表し、 $Z_{41}$ は炭素原子および窒素原子とともに環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Z_{42}$ は炭素原子とともに環を形成するのに必要な原子群を表し、Mは金属を表す。〕

【化 1 3 2】

20

## 一般式(G1-5)



30

〔式中、Cは炭素原子、Nは窒素原子を表し、 $Z_{51}$ は炭素原子および窒素原子とともに芳香族環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Z_{52}$ は炭素原子とともにアズレン環を形成する原子群を表し、Mは金属を表す。〕

【請求項 1 4】

白色発光が少なくともリン光発光に起因する光成分を含んでいることを特徴とする請求項 1～1 3 に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 1 5】

40

請求項 1～1 4 のいずれか 1 項に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする照明装置。

【請求項 1 6】

請求項 1～1 4 のいずれか 1 項に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする表示装置。

【請求項 1 7】

請求項 1～1 4 のいずれか 1 項に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子と表示手段を具備してなることを特徴とする表示装置。

【請求項 1 8】

表示手段が液晶表示素子であることを特徴とする請求項 1 7 に記載の表示装置。

50

## 【請求項 19】

請求項 1 ～ 14 のいずれか 1 項に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする電気器具。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子および該白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなる照明装置、表示装置等に関するものである。

## 【0002】

## 【従来の技術】

有機材料を発光体として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子は、様々な検討が行われてきたが、発光効率が非常に悪く本格的な実用化研究には至らなかった。しかし、1987年にコダック社の C. W. Tang らにより、有機材料をホール輸送層と発光層の 2 層に分けた機能分離型の積層構造を有する有機エレクトロルミネッセンスが提案され、このものでは 10V 以下の低電圧にも関わらず、 $1000\text{ cd/m}^2$  以上の高い発光輝度が得られることが明らかになった。そしてこれ以降、有機エレクトロルミネッセンス素子が注目されはじめ、活発な研究が行われるようになった。

## 【0003】

このような研究開発がなされた結果、現在では有機エレクトロルミネッセンス素子は、10V 程度の低電圧で  $100 \sim 10000\text{ cd/m}^2$  程度の高輝度の面発光が可能となり、また蛍光物質の種類を選択することにより青色から赤色までのフルカラー化や白色発光が可能となっている。青や緑色材料については発光効率、寿命特性ともに十分なものが開発されてきているが、赤色材料及び白色発光素子においては発光効率や寿命の更なる向上が望まれている中で、白色発光素子においてもこれまで多数の報告がなされている。

## 【0004】

白色発光を得る方法としては、一般に、R、G、B 3 波長からの発光を用いる方法と、青と黄または青緑と橙の補色関係の 2 波長の発色を用いる方法がある。

## 【0005】

3 波長方式の場合、低分子系では p-EtTAZ (トリアゾール誘導体) のキャリアブロック層を用い、R、G、B 3 波長白色発光により、また高分子系の PVK (ポリビニルカルバゾール)、電子輸送剤 PBD (オキサジアゾール誘導体) と 4 種類の色素を用い高効率の白色発光が可能であることが報告されている。

## 【0006】

また 2 波長方式においても、高輝度を達成したいくつかの白色素子が報告されている。

## 【0007】

また、これらの白色素子をさらに高効率化し、超寿命化した素子が特開 2002-164170 号公報等にも報告されている。

## 【0008】

しかしこれらは、まだ輝度効率特性が低く、寿命特性においても実用化の観点から十分とはいえず、また各発光物質の効率や寿命 (劣化) など挙動が異なることから、発光素子のレベルでみたときには、それぞれ赤、緑、青等に発光する別々の素子の集合体で構成されるのが通常であり、そのために各素子をアレイ状に配置しなければならず、作製プロセスが複雑になるという問題もあった。

## 【0009】

白色発光素子の照明用途への応用や他方式ディスプレイ、例えば LCD (液晶ディスプレイ) 等への応用を考えた場合、素子自体が白色に発光することや、作製プロセスが簡単であること、また更なる低消費電力、高発光効率化が必要である。

## 【0010】

有機エレクトロルミネッセンス素子においては、従来、高効率化のために、有機発光材料の蛍光の量子収率を高めて、量子効率を向上させるアプローチや、発光素子構造を改善し

10

20

30

40

50

て素子の低電圧駆動化を実現するアプローチなどが数多く検討されてきているが、近年、プリンストン大から励起三重項からの燐光発光を用いる有機EL素子が報告がされて(M. A. Baldo et al., nature、395巻、151～154頁(1998年))、室温で燐光を示す材料の研究が活発になってきている(例えば、M. A. Baldo et al., nature、403巻、17号、750～753頁(2000年)、米国特許第6,097,147号など)。

#### 【0011】

従来、ドーパされる微量の蛍光体からの発光は、励起一重項からの発光であり、励起一重項からの発光を用いる場合、一重項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため発光性励起種の生成確率が25%であることと、光の取り出し効率が約20%であるため、外部取り出し量子効率( $\eta_{ext}$ )の限界は5%とされているが、励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、これまでの励起一重項からの発光を用いる場合に比べて原理的に発光効率が最大4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の性能が得られ照明用にも応用可能であり注目されている。

10

#### 【0012】

燐光性化合物をドーパントとして用いるときのホストは、燐光性化合物の発光極大波長よりも短波な領域に発光極大波長を有することが必要であることはもちろんであるが、その他にも満たすべき条件があることが分かかってきており、The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence(EL'00、浜松)では、燐光性化合物についていくつかの報告がなされている。例えば、Ikaiらはホール輸送性の化合物を燐光性化合物のホストとして用いている。又、M. E. Thompsonらは、各種電子輸送性材料を燐光性化合物のホストとして、これらに新規なイリジウム錯体をドーパして用いている。更に、Tsutsuiらは、ホールブロック層の導入により高い発光効率を得ている。

20

#### 【0013】

本発明は、複数のドーパントまたはホスト化合物を用いて有機エレクトロルミネッセンス素子を構成することにより、発光色の白色度や発光輝度に優れ、また発光寿命(色ズレ)等、前記の欠点を改善した白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子を得ようとするものである。

30

#### 【0014】

##### 【特許文献1】

特開2002-164170号公報

#### 【0015】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明は上記の点に鑑みてなされたものであり、高効率、長寿命で、均一な白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子、該素子を具備してなる照明装置、表示装置または電気器具を提供することを目的とするものである。

#### 【0016】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明の上記課題は以下の手段により達成される。

40

#### 【0017】

1. 少なくとも1つの層に前記一般式(A1-1)～(F1-5)でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含有し、かつ発光が実質白色であることを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【0018】

2. 少なくとも1つの層に、前記一般式(C2-2)または(C2-3)で表される構造単位を有するポリシランを含有し、かつ発光が実質白色であることを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【0019】

50

3. 少なくとも1つの層に、分子中の窒素原子数と炭素原子数の比 ( $N/C$ ) が、0以上0.05以下である蛍光性化合物を含有し、かつ発光が実質白色であることを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0020】

4. 少なくとも1つの層に、蛍光極大波長が415nm以下、分子量が500~2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比 ( $F/(H+F)$ ) が0~0.9である蛍光性化合物を含有し、かつ発光が実質白色であることを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0021】

5. 前記、一般式 (A1-1) ~ (A1-6)、一般式 (A2-1) ~ (A2-7)、一般式 (B1-1)、一般式 (B1-6)、一般式 (B1-11)、一般式 (B1-13)、一般式 (B2-1) ~ (B2-8)、一般式 (B3-1) ~ (B3-2)、一般式 (B4-1)、一般式 (B5-1) ~ (B5-3)、一般式 (B6-1) ~ (B6-2)、一般式 (B7-1)、一般式 (B8-1)、一般式 (B9-1)、一般式 (B10-1)、一般式 (B11-1) ~ (B11-3)、一般式 (C1-1-1)、(C1-1-2)、(C1-1-3)、一般式 (C1-2-1)、(C1-2-3)、一般式 (C1-3) ~ (C1-7)、一般式 (C1-8-1)、(C1-8-2)、一般式 (C2-1)、一般式 (C2-4) ~ (C2-7)、一般式 (C3-1) ~ (C3-4)、一般式 (C4-1)、一般式 (C5-1) ~ (C5-2)、一般式 (C6-1) ~ (C6-V)、一般式 (C7-1) ~ (C7-4)、一般式 (C8-1) ~ (C8-6)、一般式 (C9-1)、一般式 (C10-1)、一般式 (C11-1)、一般式 (C12-1)、一般式 (D1-1) ~ (D1-6)、一般式 (D2-1) ~ (D2-6)、一般式 (D3-1) ~ (D3-6)、一般式 (E1-1)、一般式 (E1-5)、一般式 (E2-1) 及び (E2-5) でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を、少なくとも発光層、正孔輸送層、電子輸送層のいずれか1層に含有することを特徴とする前記1に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0022】

6. 前記、一般式 (A1-1) ~ (A1-6)、一般式 (A2-1) ~ (A2-7)、一般式 (B1-1)、一般式 (B1-6)、一般式 (B1-11)、一般式 (B1-13)、一般式 (B2-1) ~ (B2-8)、一般式 (B3-1)、(B3-2)、一般式 (B4-1)、一般式 (B5-1) ~ (B5-3)、一般式 (B6-1)、(B6-2)、一般式 (B7-1)、一般式 (B8-1)、一般式 (B9-1)、一般式 (B10-1)、一般式 (B11-1) ~ (B11-3)、一般式 (C1-1-1)、(C1-1-2)、(C1-1-3)、一般式 (C1-2-1)、(C1-2-3)、一般式 (C1-3) ~ (C1-7)、一般式 (C1-8-1)、(C1-8-2)、一般式 (C2-1)、一般式 (C2-4) ~ (C2-7)、一般式 (C3-1) ~ (C3-4)、一般式 (C4-1)、一般式 (C5-1)、(C5-2)、一般式 (C6-1) ~ (C6-V)、一般式 (C7-1) ~ (C7-4)、一般式 (C8-1) ~ (C8-6)、一般式 (C9-1)、一般式 (C10-1)、一般式 (C11-1)、一般式 (C12-1)、一般式 (D1-1) ~ (D1-6)、一般式 (D2-1) ~ (D2-6) および一般式 (D3-1) ~ (D3-6) でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を、少なくとも発光層、電子輸送層のいずれか1層に含有することを特徴とする前記1または5に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0023】

7. 前記、一般式 (A1-1) ~ (A1-6)、一般式 (A2-1) ~ (A2-7)、一般式 (B1-1)、一般式 (B1-6)、一般式 (B1-11)、一般式 (B1-13)、一般式 (B2-1) ~ (B2-8)、一般式 (B3-1)、(B3-2)、一般式 (B4-1)、一般式 (B5-1) ~ (B5-3)、一般式 (B6-1)、(B6-2)、一般式 (B7-1)、一般式 (B8-1)、一般式 (B9-1)、一般式 (B10-1)、一般式 (B11-1) ~ (B11-3)、一般式 (C1-1-1)、(C1-1-2)、

(C 1-1-3)、一般式(C 1-2-1)、一般式(C 1-2-3)、一般式(C 1-3)~(C 1-7)、一般式(C 1-8-1)、(C 1-8-2)、一般式(C 2-1)、一般式(C 2-4)~(C 2-7)、一般式(C 3-1)~(C 3-4)、一般式(C 4-1)、一般式(C 5-1)、(C 5-2)、一般式(C 6-I)~(C 6-V)、一般式(C 7-1)~(C 7-4)、一般式(C 8-1)~(C 8-6)、一般式(C 9-1)、一般式(C 10-1)、一般式(C 11-1)、一般式(C 12-1)、一般式(D 1-1)~(D 1-6)、一般式(D 2-1)~(D 2-6)、一般式(D 3-1)~(D 3-6)でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を、少なくとも発光層に含有することを特徴とする前記1、5または6に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

10

## 【0024】

8. 前記一般式(C 2-2)、(C 2-3)で表される構造単位を有するポリシラン、前記分子中の窒素原子数と炭素原子数の比(N/C)が、0以上0.05以下である蛍光性化合物、または、蛍光極大波長が415nm以下、分子量が500~2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比(F/(H+F))が0~0.9である蛍光性化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を、少なくとも発光層、正孔輸送層、電子輸送層のいずれか1層に含有することを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0025】

9. 前記一般式(C 2-2)または(C 2-3)で表される構造単位を有するポリシラン、前記分子中の窒素原子数と炭素原子数の比(N/C)が、0以上0.05以下である蛍光性化合物、または、蛍光極大波長が415nm以下、分子量が500~2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比(F/(H+F))が0~0.9である蛍光性化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を、発光層、電子輸送層のいずれか1層に含有することを特徴とする前記8に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

20

## 【0026】

10. 前記一般式(C 2-2)または(C 2-3)で表される構造単位を有するポリシラン、前記分子中の窒素原子数と炭素原子数の比(N/C)が、0以上0.05以下である蛍光性化合物、または、蛍光極大波長が415nm以下、分子量が500~2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比(F/(H+F))が0~0.9である蛍光性化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を、発光層に含有することを特徴とする前記8に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

30

## 【0027】

11. 前記、一般式(E 1-1)、一般式(E 1-5)、一般式(E 2-1)および一般式(E 2-5)でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種を正孔輸送層に含有することを特徴とする請求項1に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0028】

12. 前記、一般式(D 1-1)~(D 1-6)、一般式(D 2-1)~(D 2-6)、一般式(D 3-1)~(D 3-6)および一般式(F 1-1)~(F 1-5)でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種を正孔阻止層に含有することを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

40

## 【0029】

13. 前記一般式一般式(G 1-1)~(G 1-5)でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種を燐光性ドーパントとして発光層に含有することを特徴とする白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0030】

14. 白色発光が少なくともリン光発光に起因する光成分を含んでいることを特徴とする前記1~13に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【0031】

50

15. 前記1～14のいずれか1項に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする照明装置。

【0032】

16. 前記1～14のいずれか1項に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする表示装置。

【0033】

17. 前記1～14のいずれか1項に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子と表示手段を具備してなることを特徴とする表示装置。

【0034】

18. 表示手段が液晶表示素子であることを特徴とする前記17に記載の表示装置。

10

【0035】

19. 前記1～14のいずれか1項に記載の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子を具備してなることを特徴とする電気器具。

【0036】

以下本発明を詳述する。

【0037】

先ず、本発明において用いられる蛍光性化合物について、以下に説明する。

【0038】

先ず前記一般式(A1-1)～(A1-6)で表される化合物について説明する。

【0039】

20

一般式(A1-1)中、 $X_1$ 、 $X_2$ はアリール基または複素環基を表し、 $R_1$ 、 $R_2$ はアリール基、複素環基、脂環式炭化水素の残基またはシクロアルコキシ基を表し、かつ、 $R_1$ 、 $R_2$ のいずれか一方は脂環式炭化水素の残基またはシクロアルコキシ基を表す。また、 $R_1$ 、 $R_2$ は脂環式或いは複素環式の環を形成してもよい。また、 $X_1$ 、 $X_2$ が環を形成しても良い。

【0040】

アリール基としては、例えばフェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基、フルオレニル基等がある。複素環基としては、ピロリル基、ピロリジニル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、トリアゾリル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、フリル基、チエニル基、チアゾリル基、等がある。脂環式炭化水素の残基としては、シクロアルキル基、シクロアルケニル基等の残基があり、脂環式炭化水素の残基として特に好ましくはシクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)である。シクロアルコキシ基としては例えばシクロプロピルオキシ基、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等である。また、 $R_1$ 、 $R_2$ により形成される脂環式或いは複素環式の環としてはシクロペンテン、シクロペンタジエン、シクロヘキセン、シクロヘキサジエン等の脂環式の環、ジオキサジエン等のヘテロ環式の環があげられる。

30

【0041】

一般式(A1-2)中、 $X_3$ 、 $X_4$ はアリール基または複素環基を表し、 $R_3$ 、 $R_4$ はアリール基、複素環基、アリールオキシ基、アルキルチオ基またはアリールチオ基を表し、かつ、 $R_3$ 、 $R_4$ のいずれか一方はアリールオキシ基、アルキルチオ基またはアリールチオ基を表す。また、 $X_3$ 、 $X_4$ が環を形成しても良い。

40

【0042】

アリール基、複素環基としては、一般式(A1-1)において $X_1$ 、 $X_2$ についてあげられたものと同様の基を表し、アリールオキシ基、アリールチオ基におけるアリール基も前記アリール基と同様の基を表す。アルキルチオ基としては例えばメチルチオ基等の基を表す。

【0043】

一般式(A1-3)中、 $X_5$ 、 $X_6$ はアリール基または複素環基を表し、 $R_5$ 、 $R_6$ はアリール基、複素環基、ハロゲン原子を表し、かつ、 $R_5$ 、 $R_6$ のいずれか一方はハロゲン

50

原子を表す。また、 $X_5$ 、 $X_6$  が環を形成しても良い。

【0044】

$X_5$ 、 $X_6$  のアリール基、複素環基としては、一般式 (A1-1) において  $X_1$ 、 $X_2$  についてあげられたものと同様の基を表し、ハロゲン原子としてはフッ素、塩素等を表す。特に好ましくはフッ素原子である。

【0045】

一般式 (A1-4) 中、 $Ar_{11}$  はアリーレン基を表し、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$  は水素原子または置換基を表し、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$  は水素原子又は置換基を表すが、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$  の少なくともいずれか一方は脂環式炭化水素の残基を表す。 $R_{12}$  と  $R_{14}$ 、 $R_{11}$  と  $R_{13}$ 、 $R_{12}$  または  $R_{14}$  と  $R_{16}$ 、 $R_{11}$  または  $R_{13}$  と  $R_{15}$  が脂環式の或いは複素環式の環を形成しても良い。

【0046】

$Ar_{11}$  で表されるアリーレン基としては、例えばフェニレン基、ナフタレン基、アントラセン基、また、ビフェニレン基等の2価の基を表し、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$  は水素原子又は置換基を表すが、脂環式炭化水素の残基としてはシクロアルキル基、シクロアルケニル基等の残基があり、脂環式炭化水素の残基として特に好ましくはシクロアルキル基（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、アダマンチル基等）である。特に  $R_{15}$ 、 $R_{16}$  の両方が脂環式炭化水素の残基である場合が好ましい。また、 $R_{12}$  と  $R_{14}$ 、 $R_{11}$  と  $R_{13}$ 、 $R_{12}$  または  $R_{14}$  と  $R_{16}$ 、 $R_{11}$  または  $R_{13}$  と  $R_{15}$  で4員～7員の脂環式の或いは複素環式の環、例えば、シクロブテン環、シクロペンテン環、シクロヘキセン環、フルオレン環等を形成してもよい。

【0047】

一般式 (A1-5) 中、 $Ar_{21}$  はアリーレン基を表し、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$  は水素原子または置換基を表し、 $R_{25}$ 、 $R_{26}$  は水素原子又は置換基を表すが、 $R_{25}$ 、 $R_{26}$  の少なくともいずれか一方はアリーロキシ基、アルキルチオ基またはアリールチオ基を表す。 $R_{22}$  と  $R_{24}$ 、 $R_{21}$  と  $R_{23}$ 、 $R_{22}$  または  $R_{24}$  と  $R_{26}$ 、 $R_{21}$  または  $R_{23}$  と  $R_{25}$  が環を形成しても良い。

【0048】

$Ar_{21}$  は前記  $Ar_{11}$  で表される基と同様の基を表す。 $R_{25}$ 、 $R_{26}$  におけるアリーロキシ基、アリールチオ基のアリール基については、一般式 (1) において  $X_1$ 、 $X_2$  についてあげられたものと同様の基を表し、アルキルチオ基についてはメチルチオ、エチルチオ、イソプロピルチオ基等の基を表す。但し、 $R_{25}$ 、 $R_{26}$  の少なくともいずれか一方はアリーロキシ基、アルキルチオ基またはアリールチオ基であり、好ましくは  $R_{25}$ 、 $R_{26}$  の両方がアリーロキシ基、アルキルチオ基またはアリールチオ基である。 $R_{22}$  と  $R_{24}$ 、 $R_{21}$  と  $R_{23}$ 、 $R_{22}$  または  $R_{24}$  と  $R_{26}$ 、 $R_{21}$  または  $R_{23}$  と  $R_{25}$  とのうち特に  $R_{22}$  と  $R_{24}$  または  $R_{21}$  と  $R_{23}$  は協同してフルオレン環等を形成してもよい。

【0049】

一般式 (A1-6) 中、 $Ar_{31}$  はアリーレン基を表し、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{33}$ 、 $R_{34}$  は水素原子または置換基を表し、 $R_{35}$ 、 $R_{36}$  は水素原子又は置換基を表すが、 $R_{35}$ 、 $R_{36}$  の少なくともいずれか一方はハロゲン原子である。又、 $R_{32}$  と  $R_{34}$ 、 $R_{31}$  と  $R_{33}$ 、 $R_{32}$  または  $R_{34}$  と  $R_{36}$ 、 $R_{31}$  または  $R_{33}$  と  $R_{35}$  が環を形成しても良い。

【0050】

$Ar_{31}$  は前記  $Ar_{11}$  で表される基と同様の基を表し、 $R_{35}$ 、 $R_{36}$  は水素原子又は置換基を表すが、 $R_{35}$ 、 $R_{36}$  のいずれか一方はハロゲン原子であり、好ましくは両方がハロゲン原子である。ハロゲン原子としてはフッ素、塩素等を表す。特に好ましくはフッ素原子である。また、特に  $R_{32}$  と  $R_{34}$  または  $R_{31}$  と  $R_{33}$  は協同してフルオレン環等を形成してもよい。

【0051】

一般式 (A 1-4)、(A 1-5)、(A 1-6) において、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$ 、 $R_{25}$ 、 $R_{26}$ 、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{33}$ 、 $R_{34}$ 、 $R_{35}$ 、 $R_{36}$  が置換基を表す場合、それらの置換基の具体例としては、アルキル基（例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロ-n-ブチル基、パーフルオロ-t-ブチル基、t-ブチル基、ベンジル基等）、又脂環式炭化水素の残基、例えばシクロアルキル基（シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）及びシクロアルケニル基（例えばシクロヘキセニル基、シクロペンテニル基）等が、更に、アラルキル基（例えばベンジル基、2-フェネチル基等）、アリール基（例えばフェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基、フルオレニル基等）、アルコキシ基（例えばエトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等）、アリールオキシ基（例えばフェノキシ基等）、アルキルチオ基（メチルチオ、エチルチオ、イソプロピルチオ基等）、アリールチオ基（例えばフェニルチオ基、ナフチルチオ基、p-トリルチオ基、p-クロロフェニルチオ基）、ヒドロキシル基、アミノ基（ジメチルアミノ基、ジアリールアミノ基）、アルケニル基（例えばアリル基、1-エテニル基、1-プロペニル基、1-ブテニル基、1-オクタデセニル基等）、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等）等が挙げられる。これらの基はさらに置換されていてもよく、前記置換基としては、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、ニトロ基、シアノ基、カルボキシル基、スルホ基、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシル基、アシルオキシ基、アミノ基、カルボンアミド基、スルホンアミド基、カルバモイル基、スルファモイル基、ウレイド基、アルコキシカルボニルアミノ基、スルファモイルアミノ基等が挙げられる。

10

20

## 【0052】

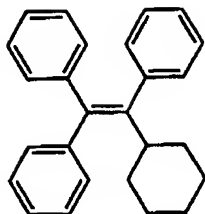
以下に、これら一般式で表される具体的化合物例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

## 【0053】

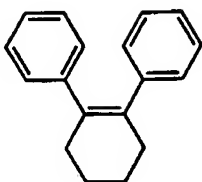
## 【化133】



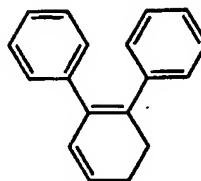
A1-1-1



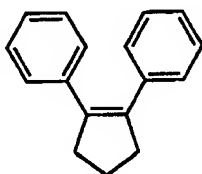
A1-1-2



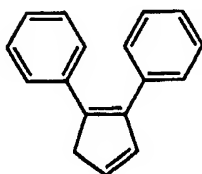
A1-1-3



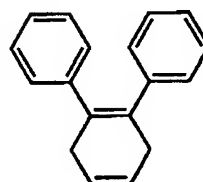
A1-1-4



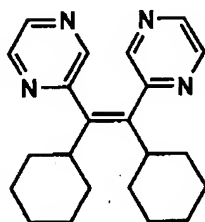
A1-1-5



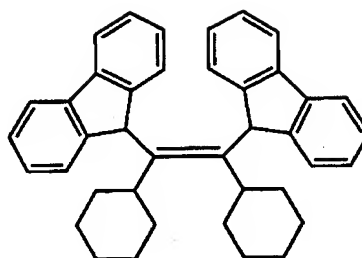
A1-1-6



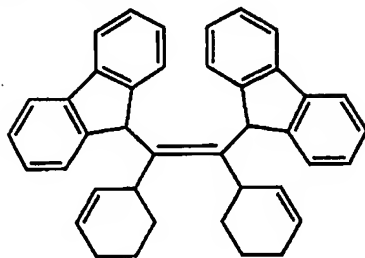
A1-1-7



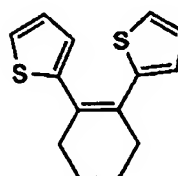
A1-1-8



A1-1-9



A1-1-10



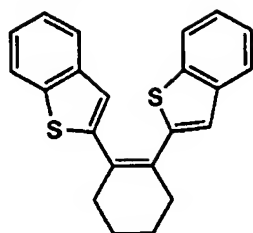
10

20

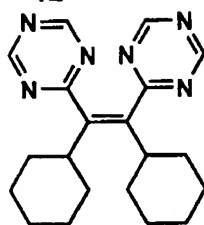
30

40

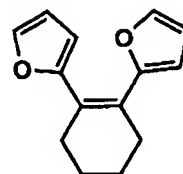
A1-1-11



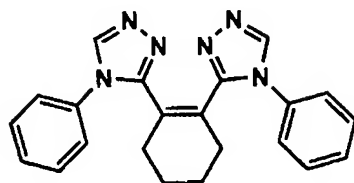
A1-1-12



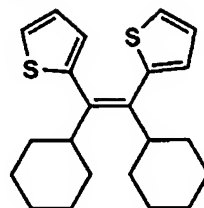
A1-1-13



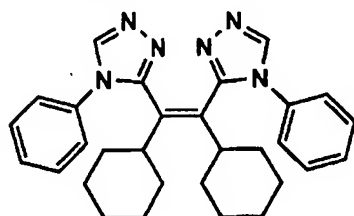
A1-1-14



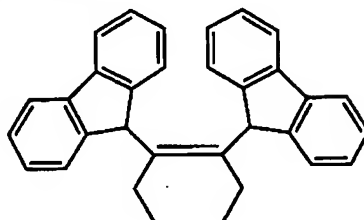
A1-1-15



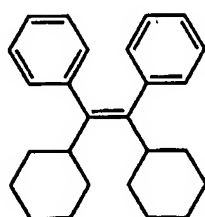
A1-1-16



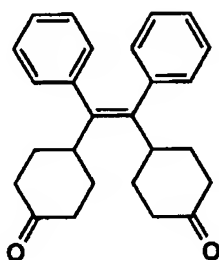
A1-1-17



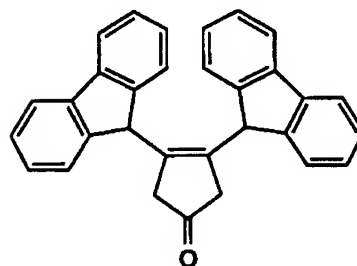
A1-1-18



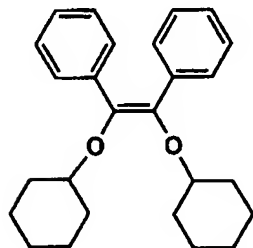
A1-1-19



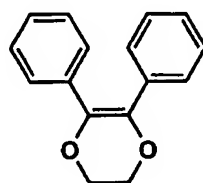
A1-1-20



A1-1-21



A1-1-22



【 0 0 5 5 】  
【 化 1 3 5 】

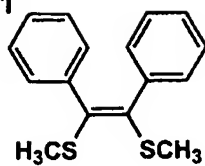
10

20

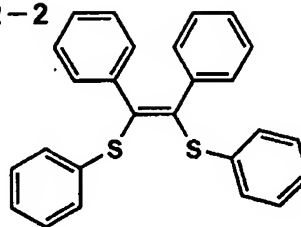
30

40

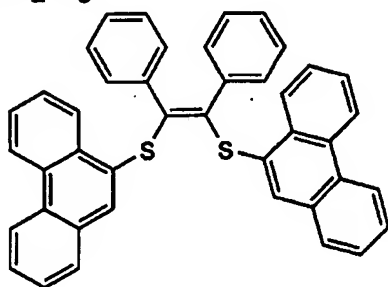
A1-2-1



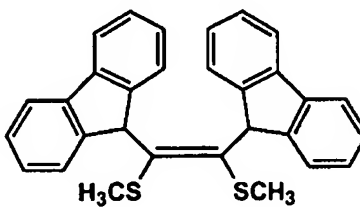
A1-2-2



A1-2-3

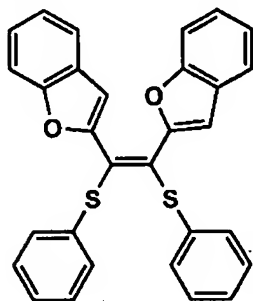


A1-2-4

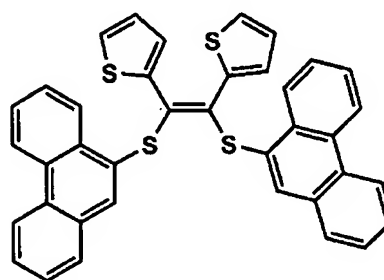


10

A1-2-5

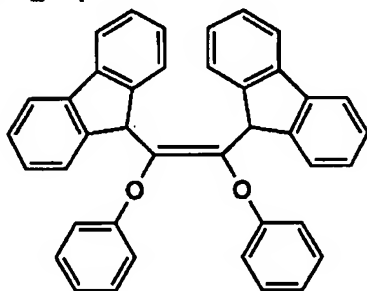


A1-2-6

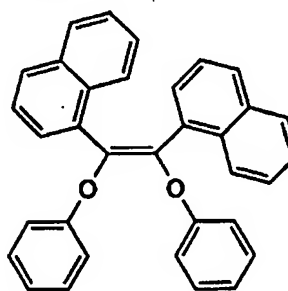


20

A1-2-7



A1-2-8



30

【 0 0 5 6 】

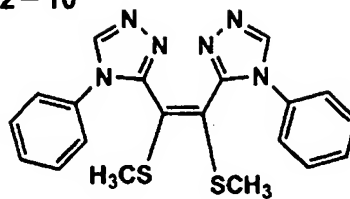
【 化 1 3 6 】

40

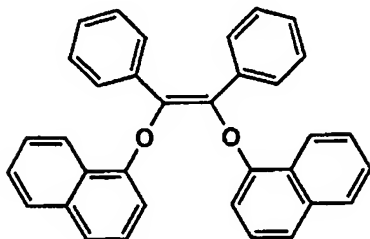
A1-2-9



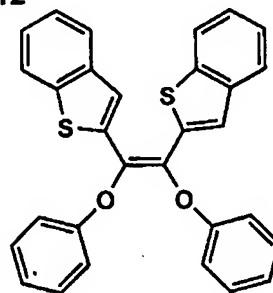
A1-2-10



A1-2-11

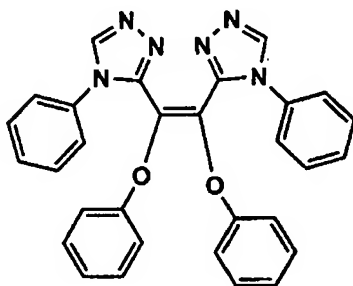


A1-2-12

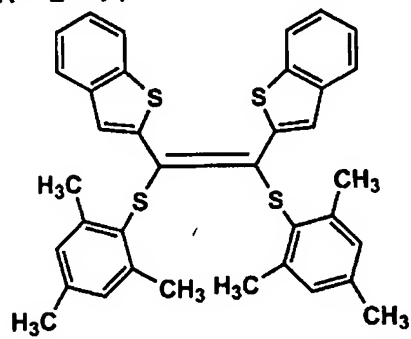


10

A1-2-13



A1-2-14

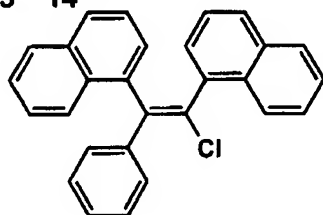
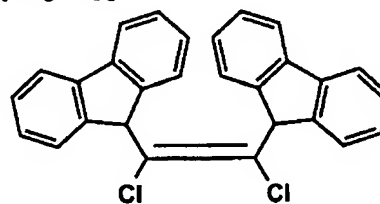
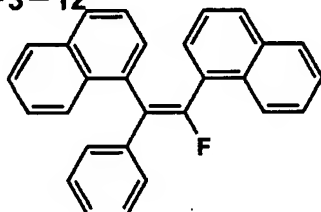
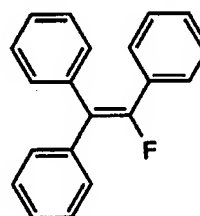
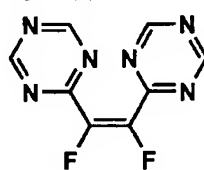
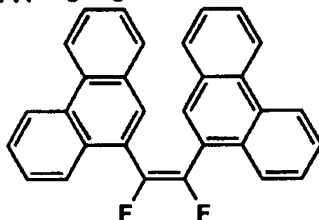
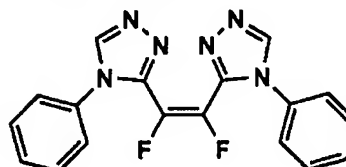
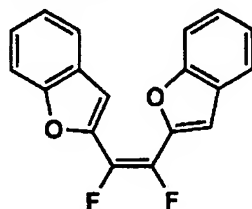
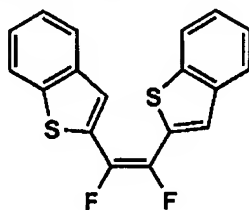
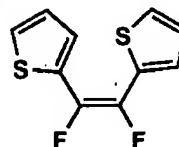
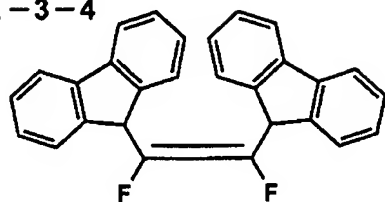
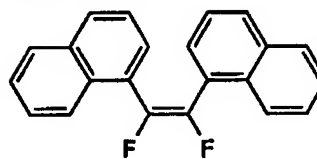
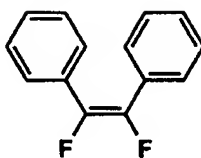
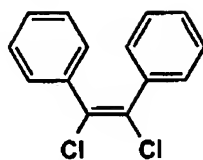


20

【 0 0 5 7 】

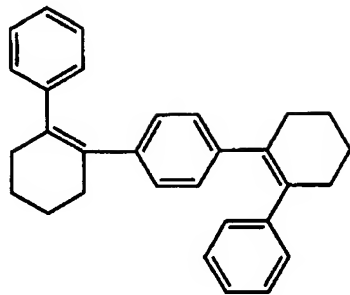
【 化 1 3 7 】

30



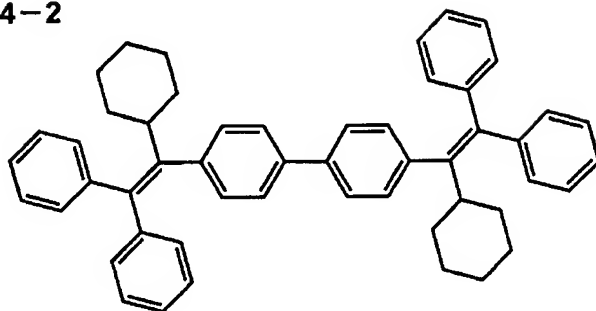
【 0 0 5 8 】  
【 化 1 3 8 】

A1-4-1



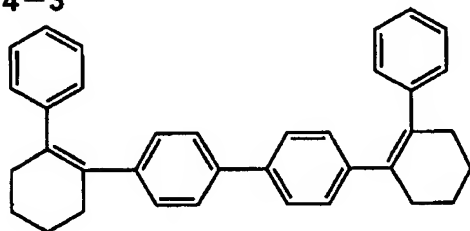
10

A1-4-2



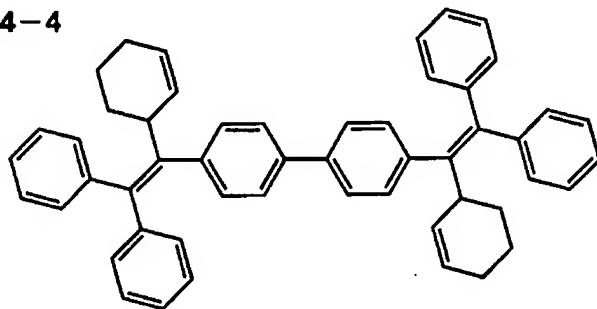
20

A1-4-3



30

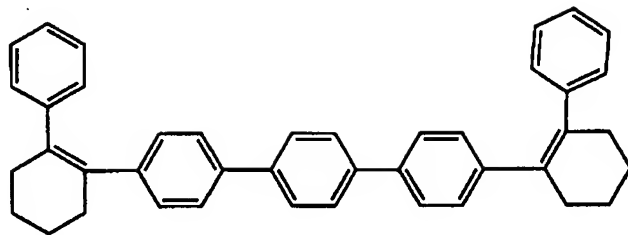
A1-4-4



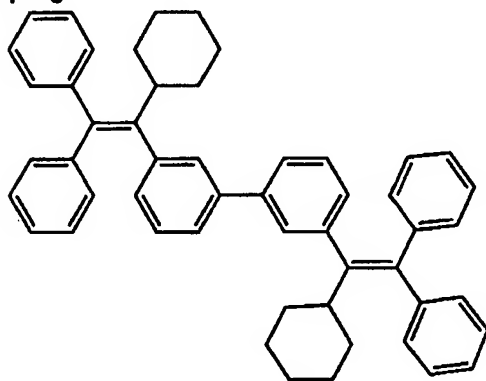
40

【 0 0 5 9 】

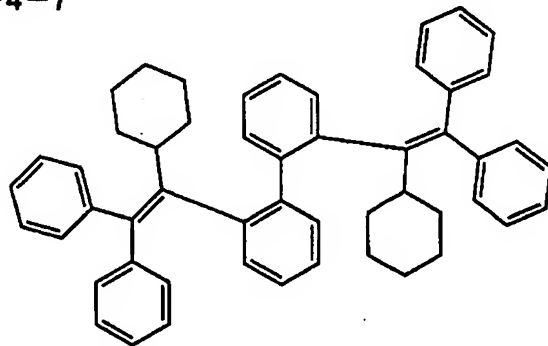
【 化 1 3 9 】

**A1-4-5**

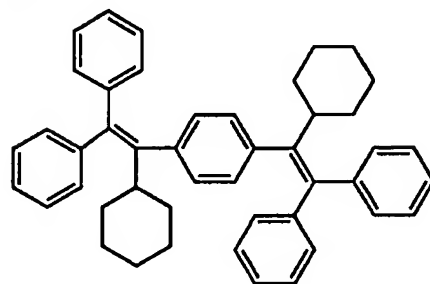
10

**A1-4-6**

20

**A1-4-7**

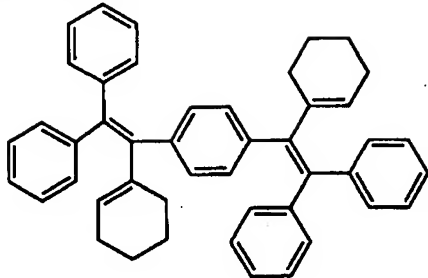
30

**A1-4-8**

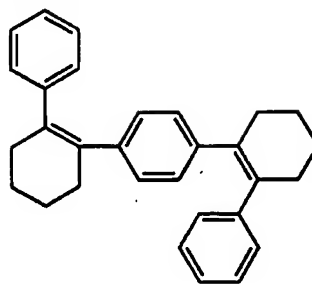
40

【 0 0 6 0 】  
【 化 1 4 0 】

A1-4-9

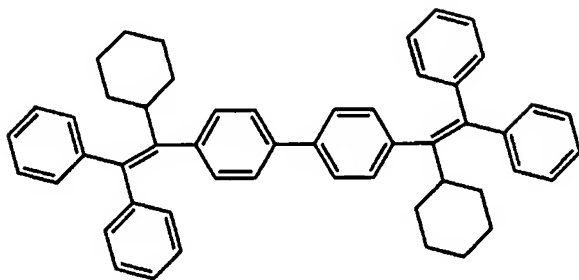


A1-4-10



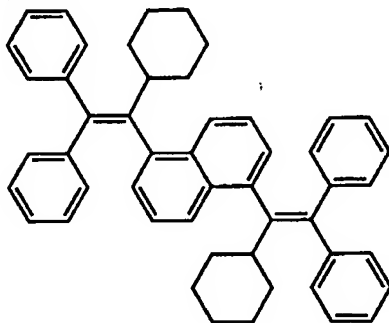
10

A1-4-11



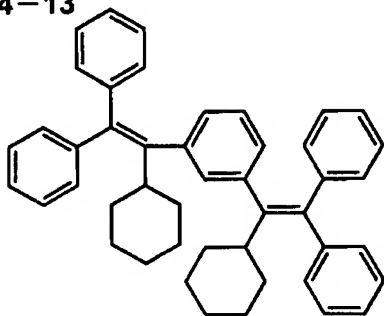
20

A1-4-12



30

A1-4-13



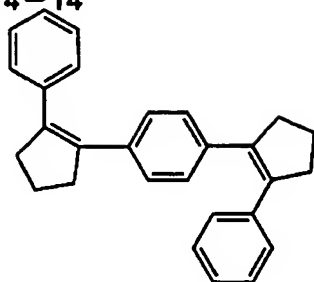
40

【 0 0 6 1 】

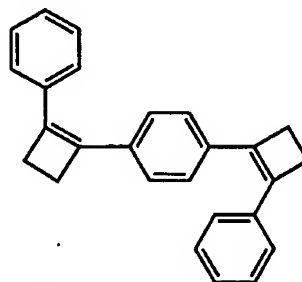
【 化 1 4 1 】



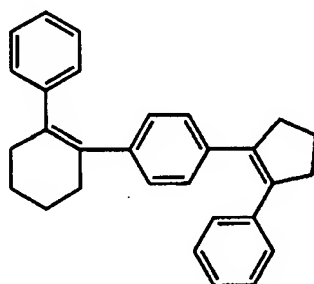
A1-4-14



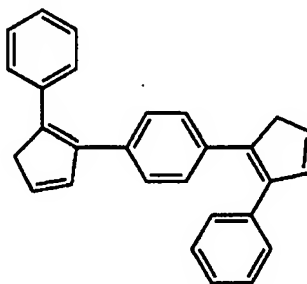
A1-4-15



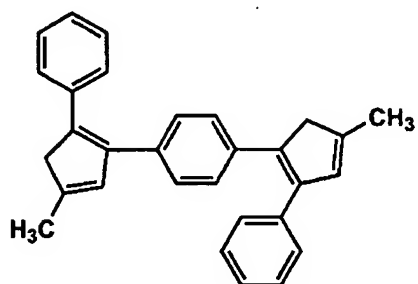
A1-4-16



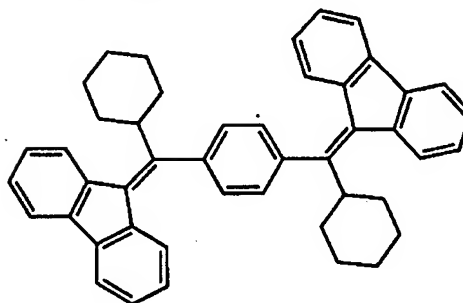
A1-4-17



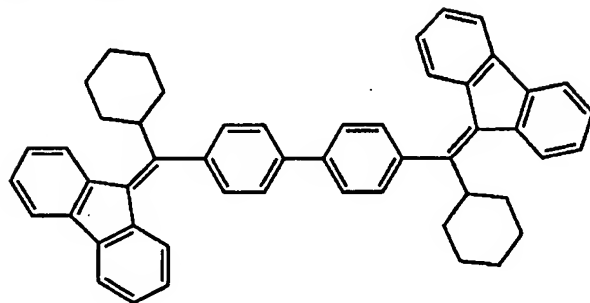
A1-4-18



A1-4-19



A1-4-20



10

20

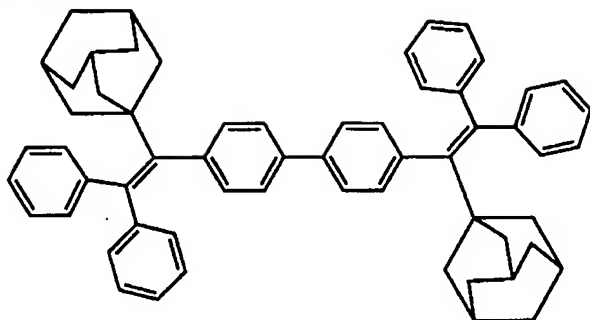
30

40

【 0 0 6 2 】

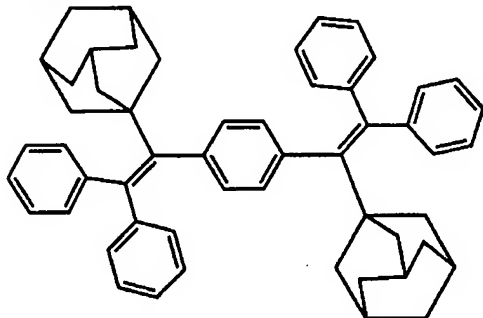
【 化 1 4 2 】

A1-4-21



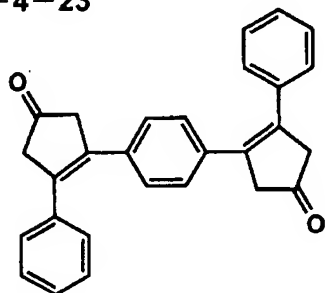
10

A1-4-22



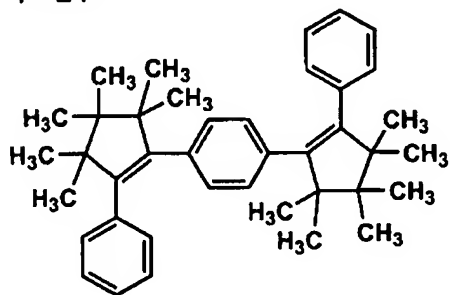
20

A1-4-23



30

A1-4-24



40

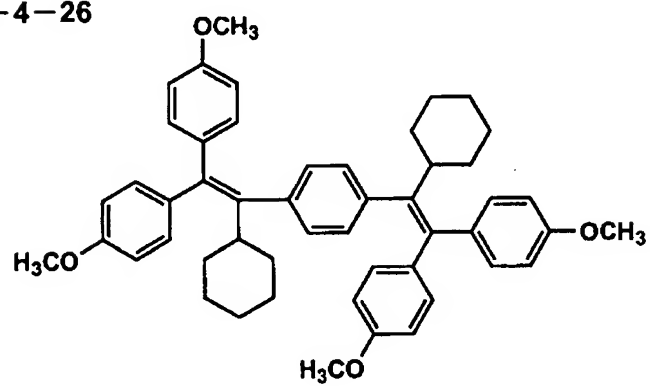
【 0 0 6 3 】

【 化 1 4 3 】

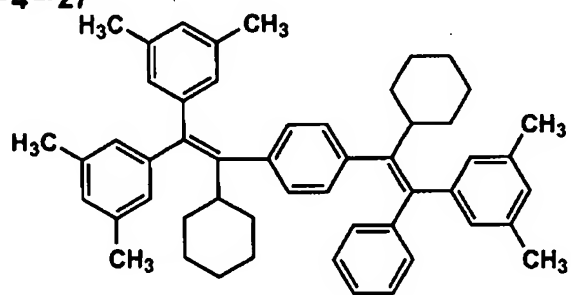
4-25

Chemical structure 4-25 is a complex polycyclic molecule. It features a central biphenyl core. The left phenyl ring is substituted with a 2,4,6-trimethylphenyl group and a cyclohexyl group. The right phenyl ring is substituted with a 2,4,6-trimethylphenyl group and a cyclohexyl group. The two phenyl rings are connected by a central carbon atom which is also bonded to a cyclohexyl group.

**A1-4-26**



**A1-4-27**

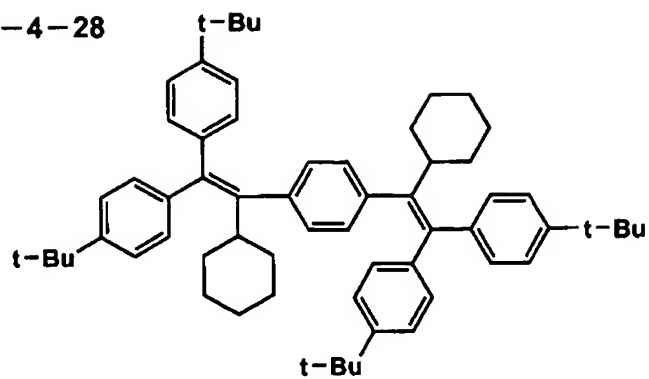


【 0 0 6 4 】

【化 1 4 4】

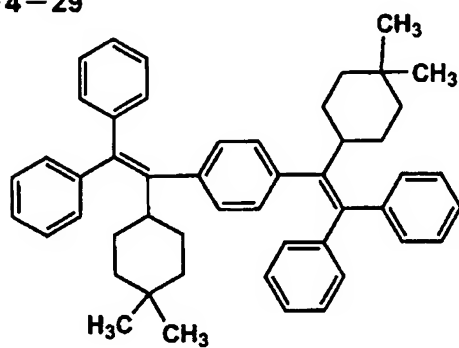
40

A1-4-28



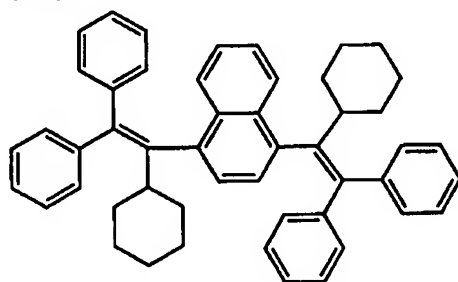
10

A1-4-29



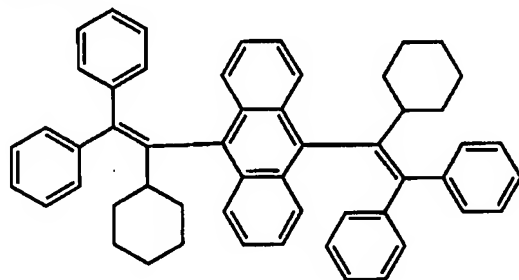
20

A1-4-30



30

A1-4-31

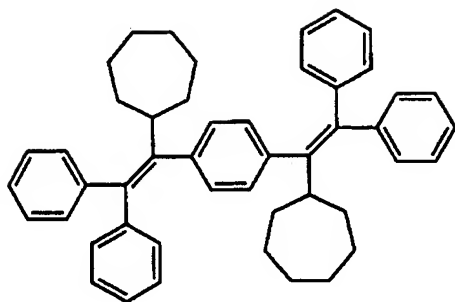


40

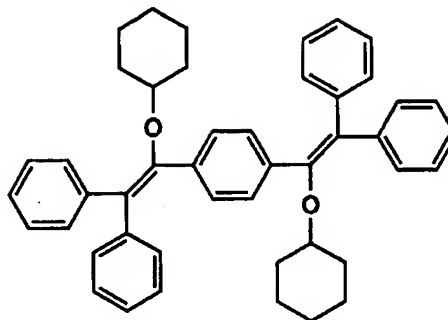
【 0 0 6 5 】

【 化 1 4 5 】

A1-4-32

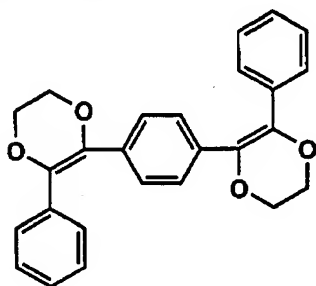


A1-4-33

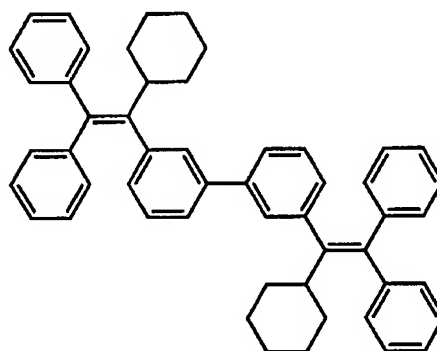


10

A1-4-34

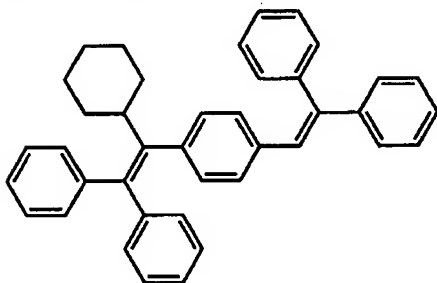


A1-4-35



20

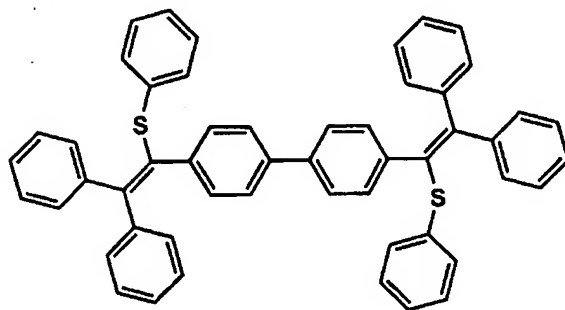
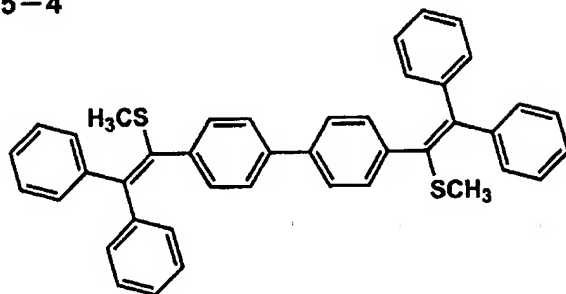
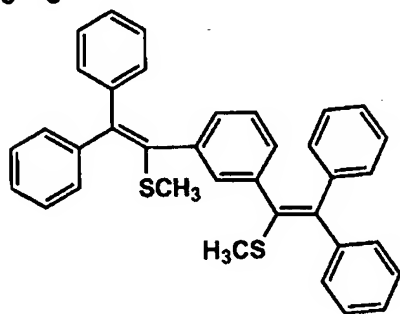
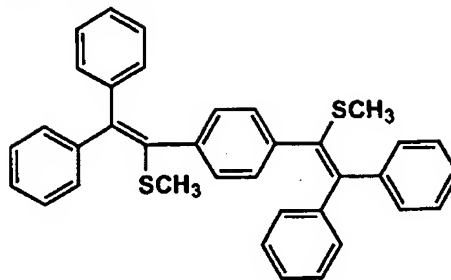
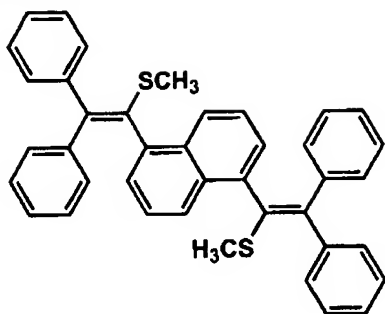
A1-4-36



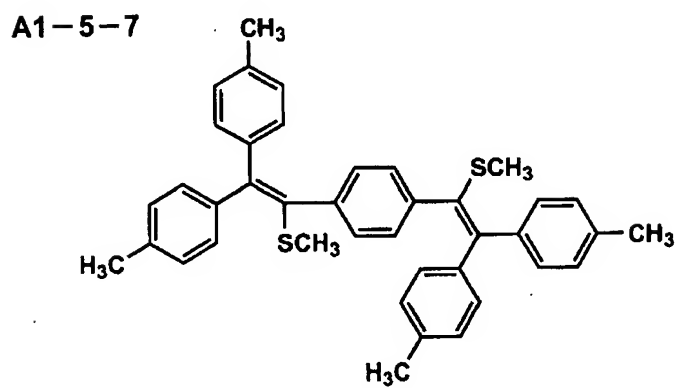
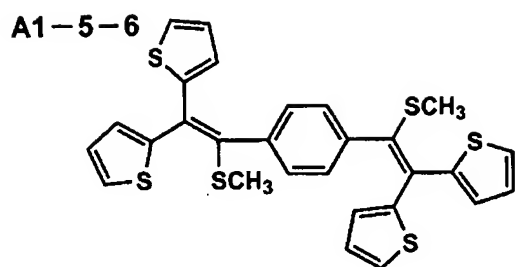
30

【 0 0 6 6 】

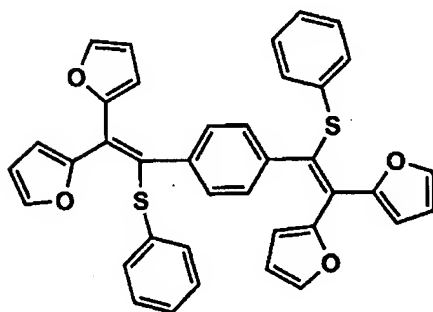
【 化 1 4 6 】



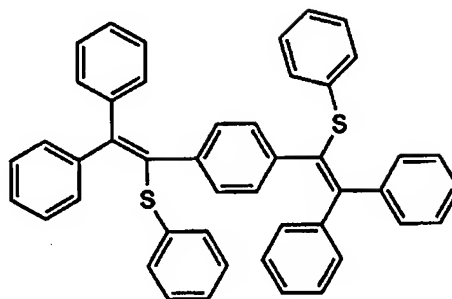
【 0 0 6 7 】  
【 化 1 4 7 】



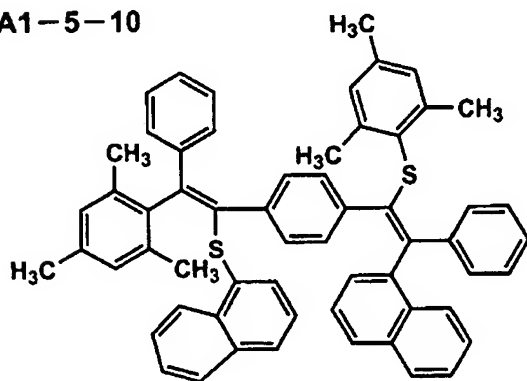
A1-5-8



A1-5-9



A1-5-10



[ 0 0 6 8 ]  
[ 化 1 4 8 ]

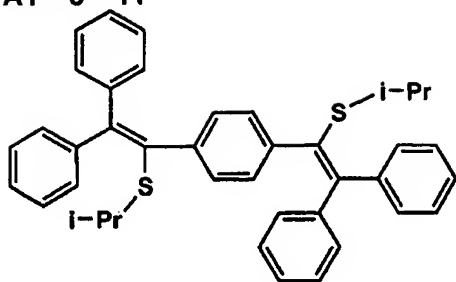
10

20

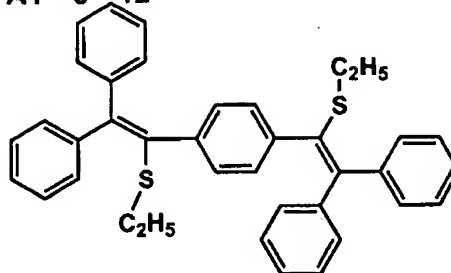
30

40

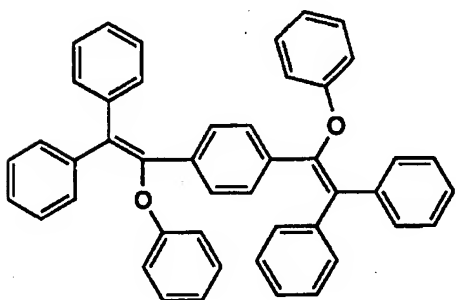
A1-5-11



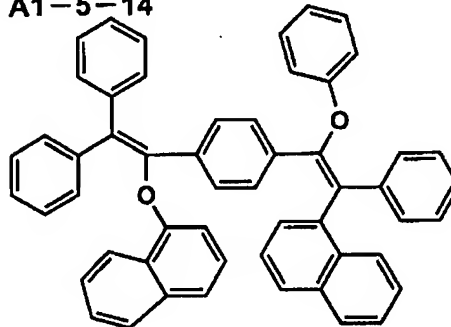
A1-5-12



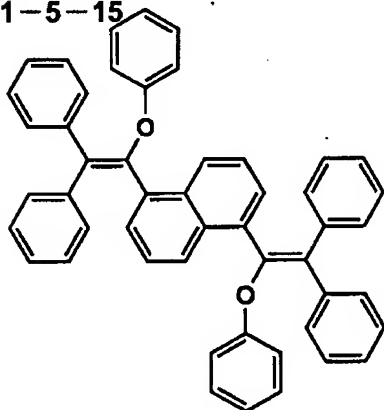
A1-5-13



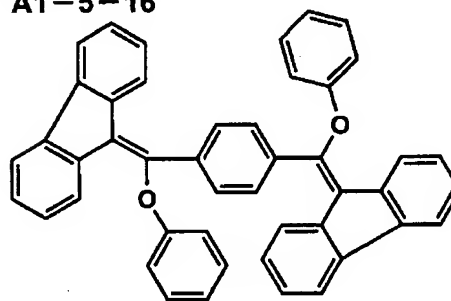
A1-5-14



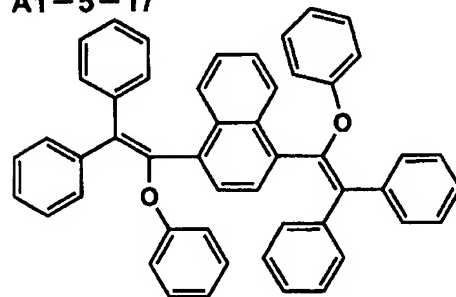
A1-5-15



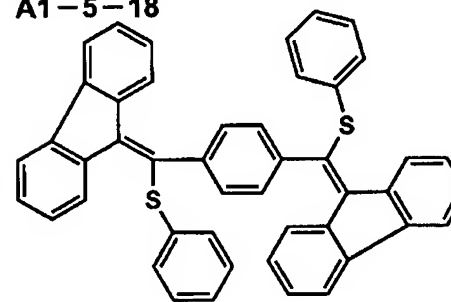
A1-5-16



A1-5-17

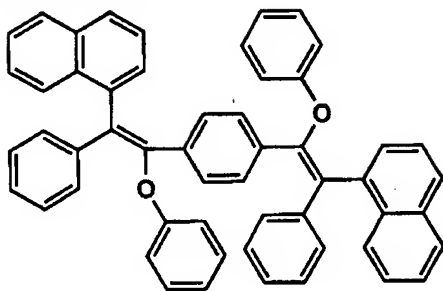


A1-5-18

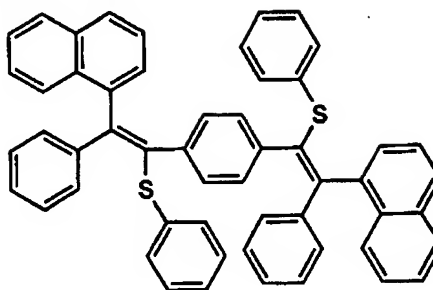




A1-5-19

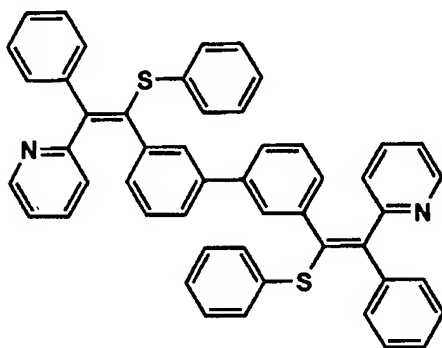


A1-5-20

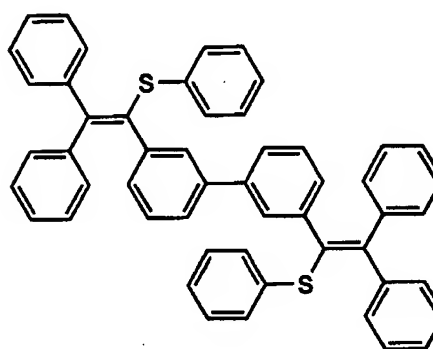


10

A1-5-21

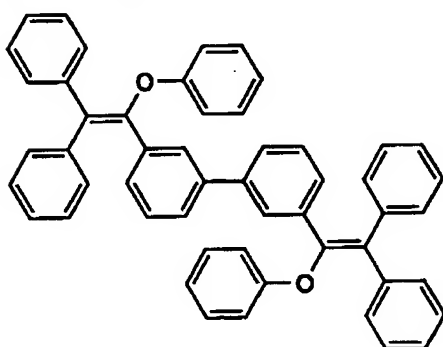


A1-5-22

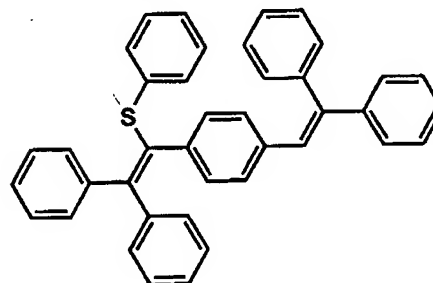


20

A1-5-23



A1-5-24

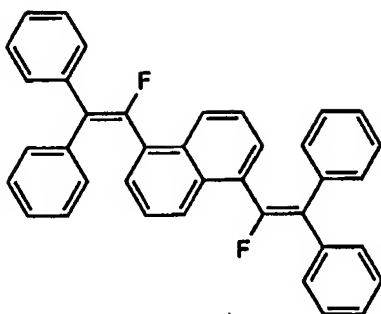


30

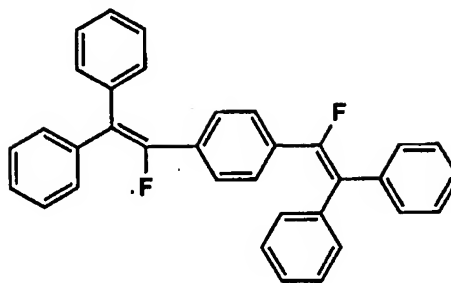
【 0 0 7 0 】  
【 化 1 5 0 】

40

A1-6-1

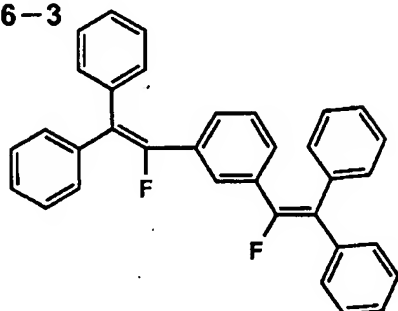


A1-6-2



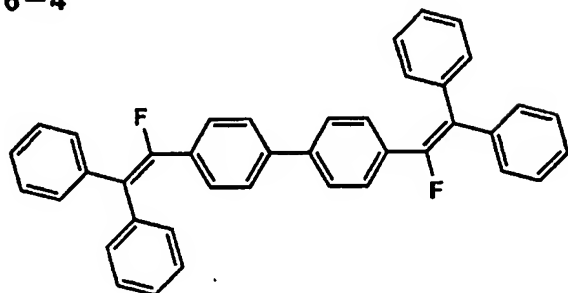
10

A1-6-3



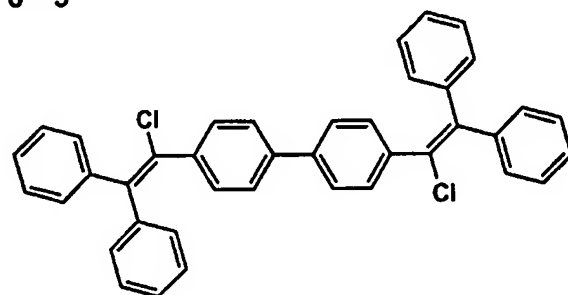
20

A1-6-4



30

A1-6-5

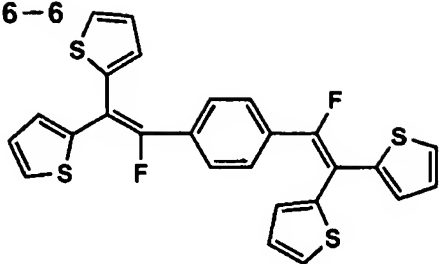


40

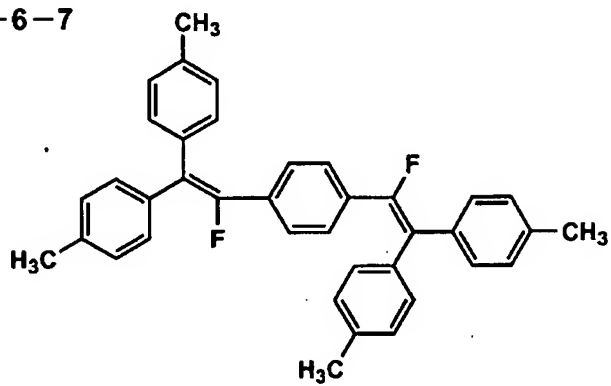
【 0 0 7 1 】

【 化 1 5 1 】

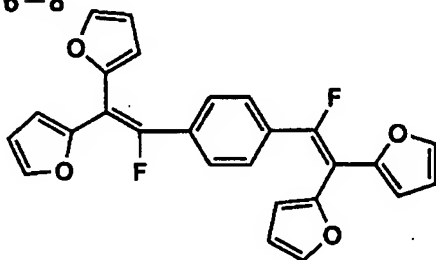
A1-6-6



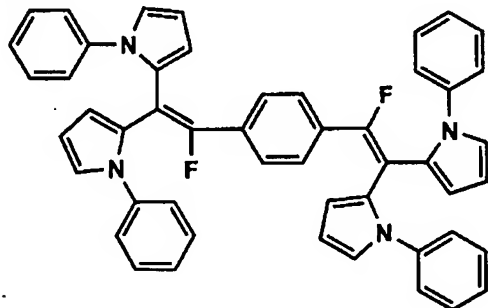
A1-6-7



A1-6-8



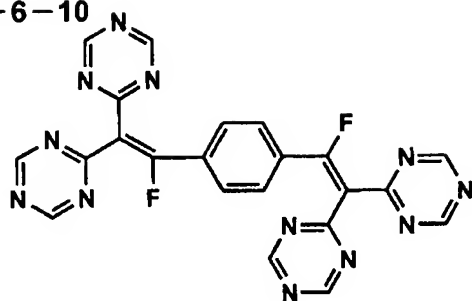
A1-6-9



【 0 0 7 2 】

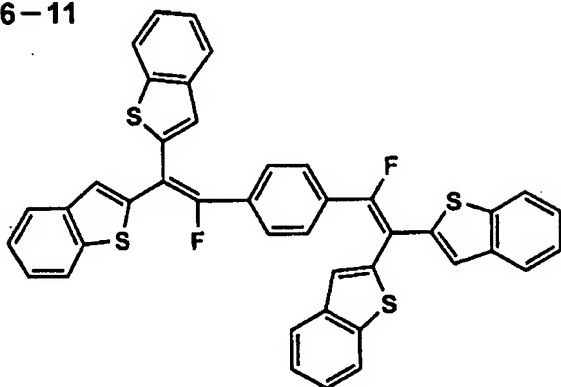
【 化 1 5 2 】

A1-6-10



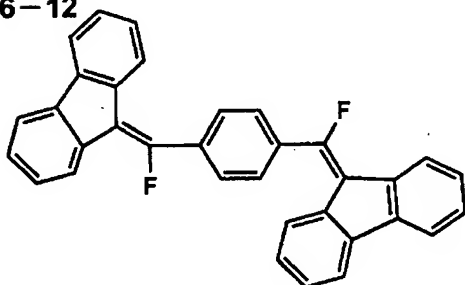
10

A1-6-11



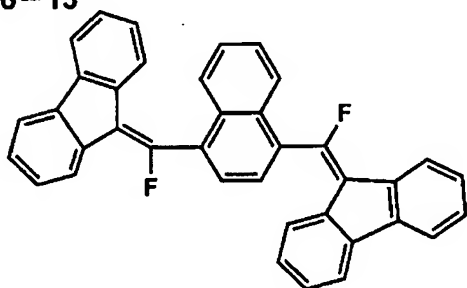
20

A1-6-12



30

A1-6-13

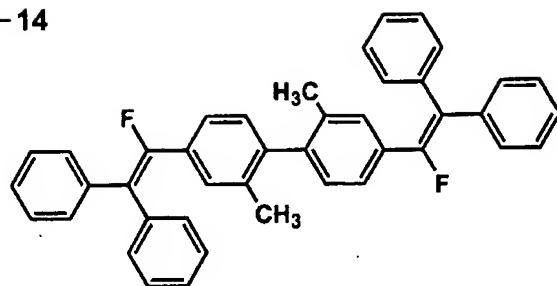


40

【 0 0 7 3 】

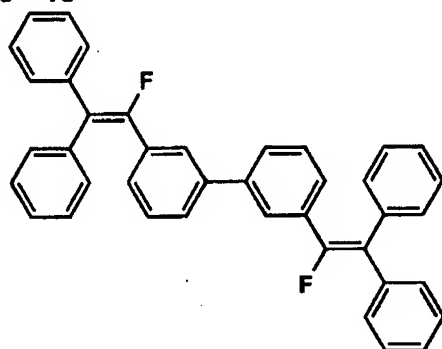
【 化 1 5 3 】

A1-6-14



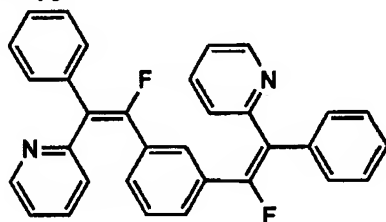
10

A1-6-15



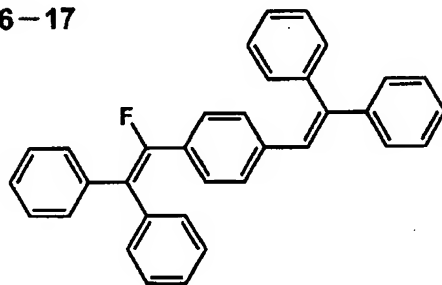
20

A1-6-16



30

A1-6-17



40

【0074】

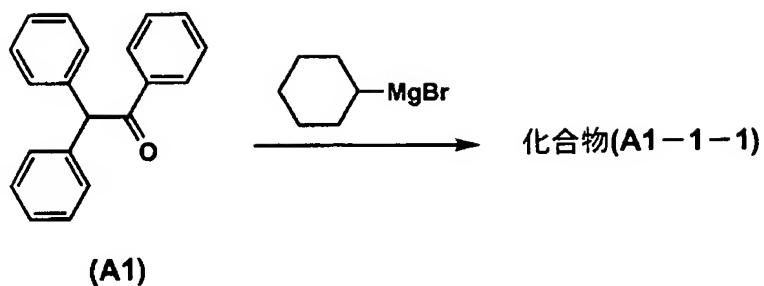
以下に、これら本発明の化合物の具体的な合成例を示す。

【0075】

合成例〈化合物（A1-1-1）の合成〉

【0076】

【化154】



10

## 【0077】

反応容器を脱気後、窒素雰囲気下で、化合物(A1) 10 gを脱水テトラヒドロフラン50 mlに溶解した。その後、反応液を $-5^{\circ}\text{C}$ ～ $0^{\circ}\text{C}$ に保ちながら、シクロヘキシルマグネシウムブロミドをテトラヒドロフラン溶液で化合物(A1)に対して等モルとなる分だけ滴下した。反応液は $0^{\circ}\text{C}$ で1時間攪拌後、室温で30分攪拌した。その後、反応液を水にあけ、酢酸エチルにて抽出した。有機層を5%炭酸ナトリウム水溶液で洗った後、3回水洗し有機層を分離し、硫酸マグネシウムで乾燥後、酢酸エチルとテトラヒドロフランを減圧留去した。カラムクロマトグラフィーで精製した後、アセトニトリルで再結晶を行い、

20

## 【0078】

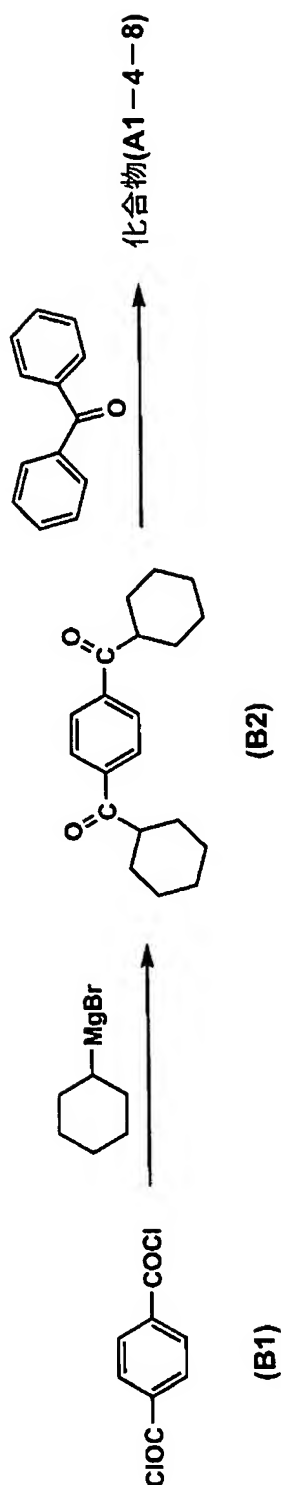
NMRおよびマススペクトルにより、目的化合物(A1-1-1)であることを確認した。

## 【0079】

合成例〈化合物(A1-4-8)の合成〉

## 【0080】

## 【化155】



10

20

30

40

## 【0081】

反応容器を脱気後、窒素雰囲気下で、1,3-ビス(ジフェニルホスフィノ)プロパンニッケル(II)クロリドを0.05gと化合物(B1)5gを脱水テトラヒドロフラン50mlに溶解した。その後、反応液を $-5^{\circ}\text{C}$ ~ $0^{\circ}\text{C}$ に保ちながら、シクロヘキシルマグネシウムブロミドをテトラヒドロフラン溶液で化合物(B1)に対して2倍モルとなる分だけ滴下した。反応液は $0^{\circ}\text{C}$ で1時間攪拌後、室温で30分攪拌した。その後、反応液を水

50

あけし、酢酸エチルにて抽出した。有機層を5%炭酸ナトリウム水溶液で洗った後、3回水洗し有機層を分離し、硫酸マグネシウムで乾燥後、酢酸エチルとテトラヒドロフランを減圧留去した。カラムクロマトグラフィーで精製した後、アセトニトリルで再結晶を行い、化合物(B2)を4.7g(収率65%)得た。

【0082】

脱気後、窒素雰囲気下で、化合物(B2)を4.0g、ベンゾフェノン12.3gを脱水テトラヒドロフラン50mlに溶解した。さらに、四塩化チタンを3.0ml反応液に投入した後、亜鉛のテトラヒドロフラン溶液100mlを懸濁のまま、ゆっくり滴下した。反応液を3時間リフラックスした。その後、3%塩酸水溶液を50ml滴下し、2時間攪拌した後、反応液を水あけし、酢酸エチルにて抽出した。有機層を3回水洗し有機層を分離し、硫酸マグネシウムで乾燥後、酢酸エチルとテトラヒドロフランを減圧留去した。カラムクロマトグラフィーで精製した後、メタノールで再結晶を行い、化合物(A1-4-8)を4.1g(収率51%)得た。

10

【0083】

NMRおよびマススペクトルにより、目的化合物(A1-4-8)であることを確認した。

【0084】

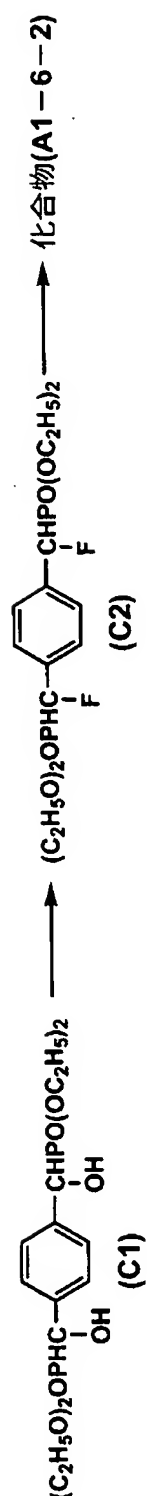
合成例<化合物(A1-6-2)の合成>

【0085】

【化156】

20





10

20

30

40

## 【0086】

反応容器を脱気後、窒素雰囲気下で、テレフタルアルデヒド10gと亜リン酸ジエチル10gとトリエチルアミン15gを添加し室温で10分攪拌した。析出物をろ過して、ジクロロメタンで洗浄することにより(C1)を24g得た(収率80%)。次いで、脱気後、窒素雰囲気下で(C1)3.2gをジクロロメタン50mlに懸濁溶解した溶液に、室温でジエチルアミノ硫黄トリフルオリド(DAST)5gを添加した。滴下後は、黄色溶

50

液となった。この溶液を20分攪拌後、5%の炭酸水素ナトリウム水溶液を添加し、反応をクエンチした。反応液を水あけし、ジクロロメタンの有機層を抽出した。有機層を2回水洗してから硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去することで(C2)を2.3g得た(収率78%)。更に、(C2)2.0gを窒素雰囲気下で100mlの脱水テトラヒドロフランに溶解し、ドライアイス/アセトンで-78度に冷却した。この反応液に、n-ブチルリチウムのn-ヘキサン溶液10mlをゆっくり滴下した。1時間攪拌後、ベンゾフェノン2.0gを添加し、しばらく攪拌した後、室温にしてさらに3時間攪拌した。その後、溶媒を減圧留去し、酢酸エチルと水を添加し有機層を抽出した。硫酸マグネシウムで乾燥後、酢酸エチルを減圧留去し、カラムクロマトグラフィーにより精製して、1.6gの目的物を得た(収率70%)。NMRおよびマススペクトルにより、目的化合物 (A1-6-2)であることを確認した。

【0087】

合成例〈化合物(A1-5-2)の合成〉

【0088】

【化157】



10

20

30

40

## 【0089】

従来公知の方法で化合物(D1)を合成した。(D1) 5.0 gを窒素雰囲気下で200 mlの脱水テトラヒドロフランに溶解し、ドライアイス/アセトンで-78度に冷却した。この反応液に、n-ブチルリチウムのn-ヘキサン溶液25 mlをゆっくり滴下した。1時間攪拌後、メチルジスルファニルメタンを3.0 g添加し、しばらく攪拌した後、室温にしてさらに3時間攪拌した。その後、溶媒を減圧留去し、酢酸エチルと水を添加し有

50

機層を抽出した。硫酸マグネシウムで乾燥後、酢酸エチルを減圧留去し、カラムクロマトグラフィーで精製し(D2)を4.6g得た(収率74%)。(D2)を4.0gとベンゾフェノン4.0gを、ジメチルスルホキシド100mlに溶解し、これにカリウムt-ブトキシド2.0gを加え、窒素気流下9時間加熱攪拌した後、一晩放置した。得られた混合物にメタノール100mlを加え、析出した結晶を濾過した。濾過した結晶を水100mlで3回、続いてメタノール100mlで3回洗浄し、カラム精製を行って目的物を2.9gを得た(収率65%)。NMRおよびマススペクトルにより、目的化合物(A1-5-2)であることを確認した。

【0090】

前記一般式(A2-1)で表される化合物について説明する。

10

【0091】

一般式(A2-1)において、Pはリン原子を表し、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ および $R_{15}$ は一価の置換基をあらわす。

【0092】

一価の置換基としては、アルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アリール基(フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等)、アルケニル基(ビニル基、プロペニル基、スチリル基等)、アルキニル基(エチニル基等)、アルキルオキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(フェノキシ基等)、アルキルチオ基(メチルチオ基、エチルチオ基、i-プロピルチオ基等)、アリールチオ基(フェニルチオ基等)、アミノ基、アルキルアミノ基(ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等)、アリールアミノ基(アニリノ基、ジフェニルアミノ基等)、ハロゲン原子(フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基(ピロール基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)等が挙げられる。隣接する置換基同士は環を形成しても良い。

20

【0093】

好ましくは、 $R_{11} \sim R_{15}$ のうち、少なくとも3個が芳香族基の時であり、より好ましくは、 $R_{11} \sim R_{15}$ の全てが芳香族基の時である。芳香族基としては上記アリール基およびヘテロアリール基(ピロール基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル等)が挙げられる。

30

【0094】

次に、一般式(A2-2)について説明する。Pはリン原子を表し、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ および $R_{23}$ は一価の置換基をあらわし、Xはカルコゲン原子を表す。

【0095】

一価の置換基としては一般式(A2-1)中の $R_{11} \sim R_{15}$ と同様の置換基が挙げられ、カルコゲン原子として好ましくは酸素原子または硫黄原子であり、最も好ましくは、酸素原子である。

【0096】

40

次に一般式(A2-3)について説明する。式中、Pはリン原子を表し、 $R_{31}$ は一価の置換基をあらわし、 $X_{31}$ 、 $X_{32}$ 、 $X_{33}$ 、 $X_{34}$ 、 $X_{35}$ 、 $X_{36}$ 、 $X_{37}$ および $X_{38}$ はそれぞれ窒素原子またはC- $R_{32}$ をあらわす。 $X_{31}$ 、 $X_{32}$ 、 $X_{33}$ 、 $X_{34}$ 、 $X_{35}$ 、 $X_{36}$ 、 $X_{37}$ および $X_{38}$ の複数がC- $R_{32}$ であらわされるとき、それらは同じでも異なってもよい。 $R_{32}$ は一価の置換基をあらわす。

【0097】

一価の置換基としては一般式(A2-1)中の $R_{11} \sim R_{15}$ と同様の置換基が挙げられる。好ましくは、一般式(A2-4)で表される時であり、より好ましくは、一般式(A2-4)中の $R_{41}$ が芳香族基である時である。

【0098】

50

本発明の化合物は、有機エレクトロルミネッセンス素子のいずれの層に用いても良いが、固体状態において強い蛍光を持つ化合物であり、電場発光性にも優れており、発光材料として有効に使用できる。また、金属電極からの優れた電子注入性および電子輸送性に非常に優れているため、他の発光材料を用いた素子において、電子輸送材料として使用した場合にも、優れた発光効率を示す。

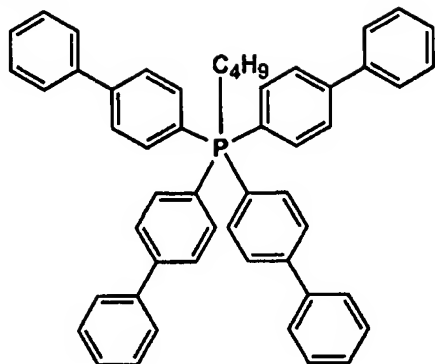
【0099】

以下に具体的な化合物の例を挙げるが、本発明は、これらに限定されるものではない。

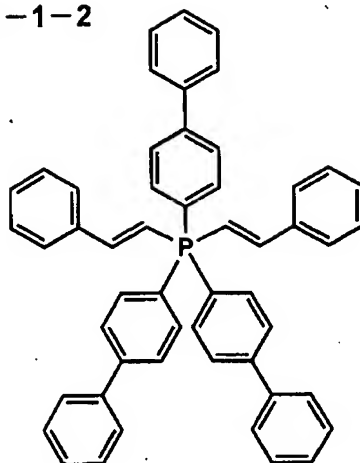
【0100】

【化158】

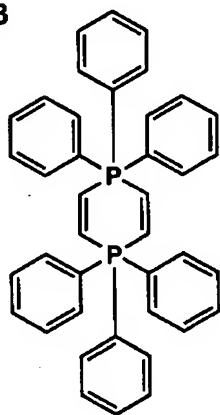
A2-1-1



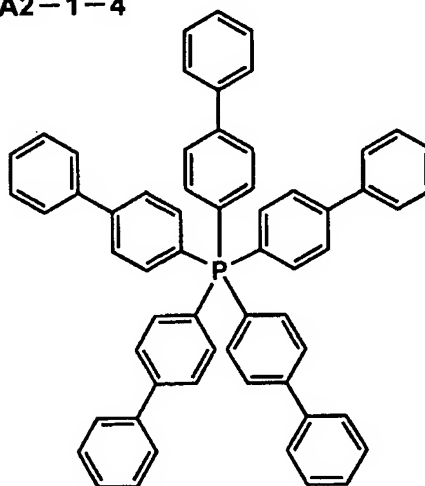
A2-1-2



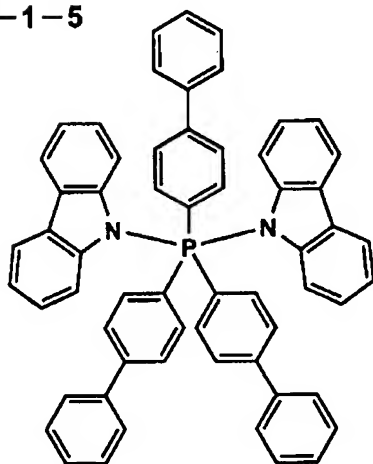
A2-1-3



A2-1-4



A2-1-5



[ 0 1 0 1 ]  
[ 化 1 5 9 ]

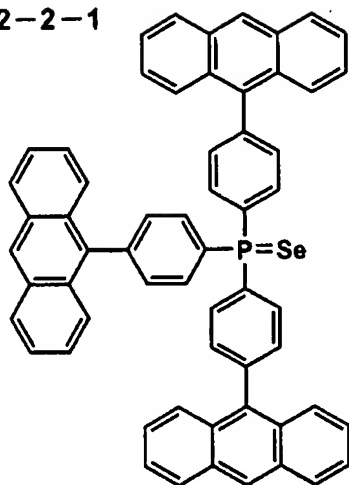
10

20

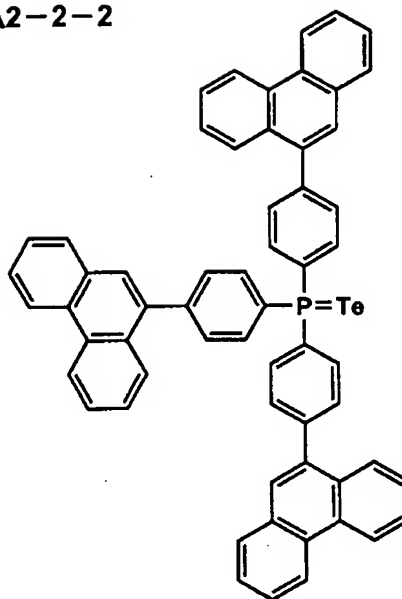
30

40

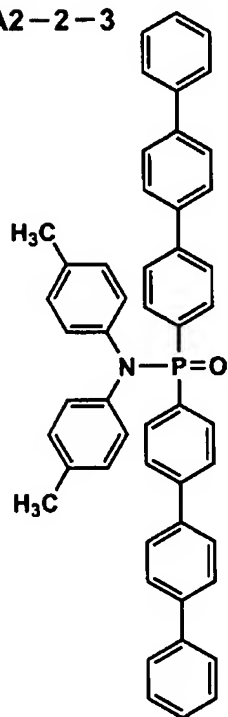
A2-2-1



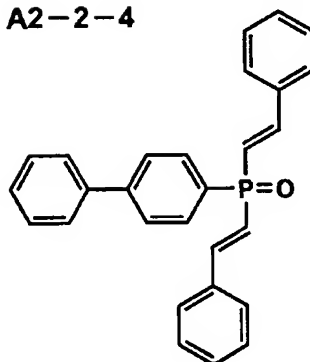
A2-2-2



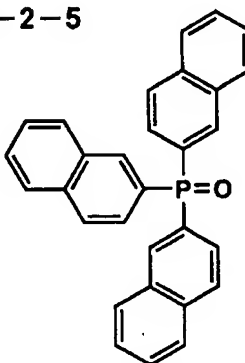
A2-2-3



A2-2-4



A2-2-5



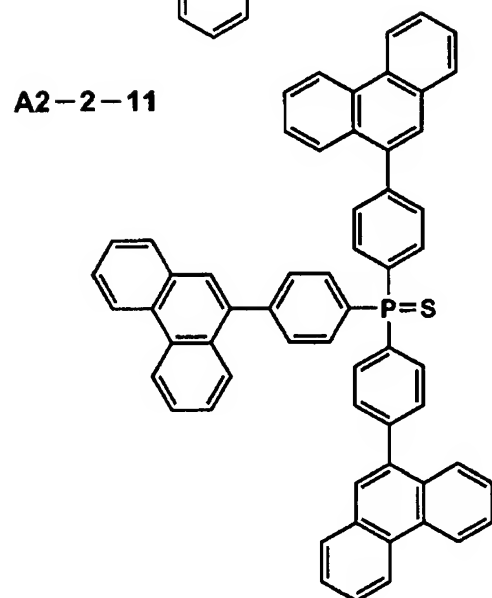
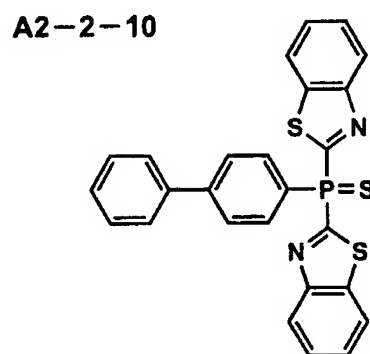
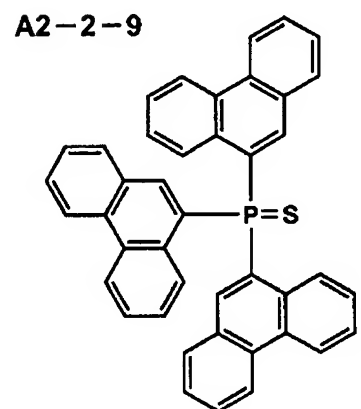
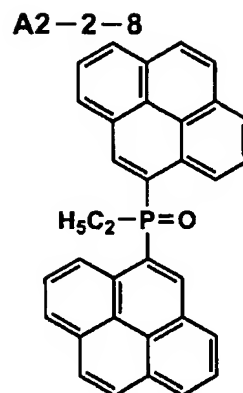
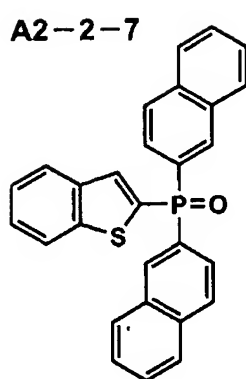
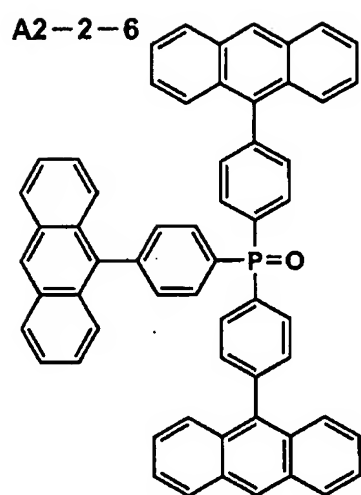
10

20

30

40

【 0 1 0 2 】  
【 化 1 6 0 】



【 0 1 0 3 】  
【 化 1 6 1 】

10

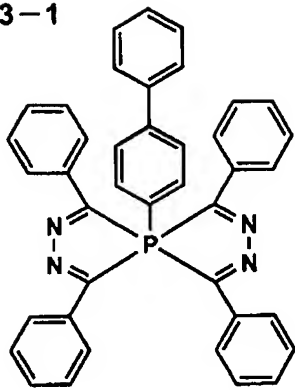
20

30

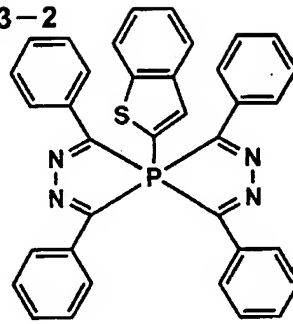
40



A2-3-1

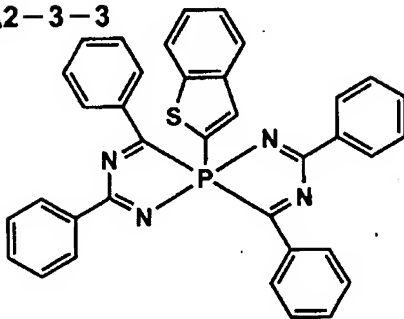


A2-3-2



10

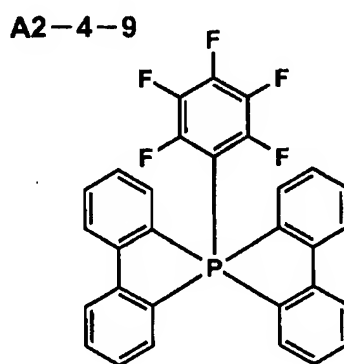
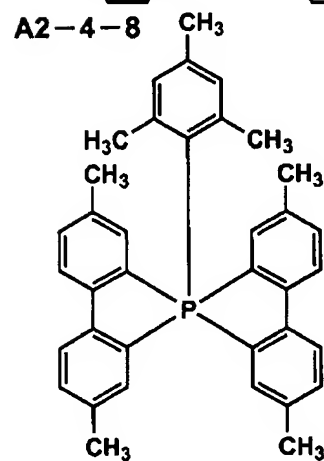
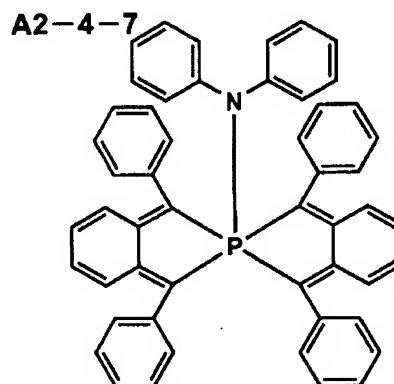
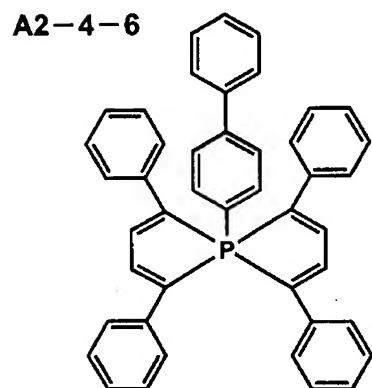
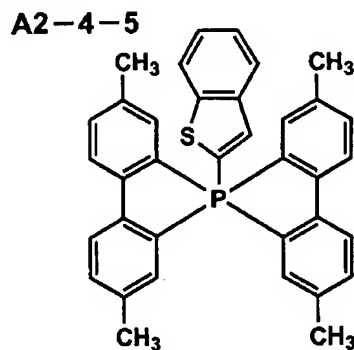
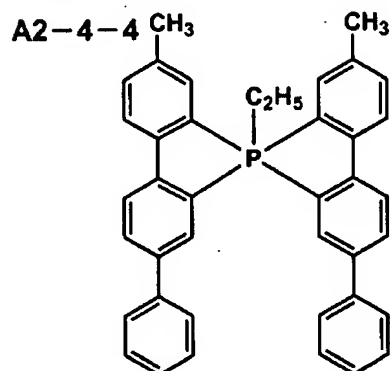
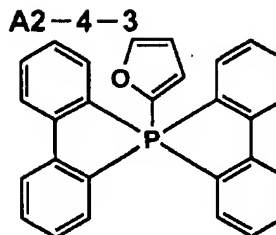
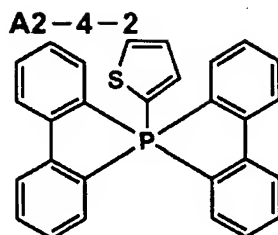
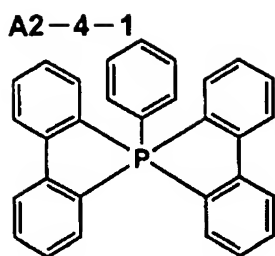
A2-3-3



20

【 0 1 0 4 】

【 化 1 6 2 】



【0105】

更に、本発明者等は、リン光発光用の材料について鋭意検討を重ねた結果、分子内にリン原子を有する化合物をリン光発光素子のいずれかの層に含有させて有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した場合に、素子の発光輝度および寿命が改善されることを見出した。

10

20

30

40

50

## 【0106】

本発明に係わる化合物は分子内にリン原子を含有している化合物であり、好ましくは一般式(A2-5)～A2-(7)および前記の一般式(A2-1)～(A2-4)に示される化合物である。

## 【0107】

一般式(A2-5)において、Pはリン原子を表し、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ および $R_{53}$ は一価の置換基をあらわす。一価の置換基としては一般式(A2-1)中の $R_{11}$ ～ $R_{15}$ と同様の置換基が挙げられる。好ましくは、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ および $R_{53}$ がすべて芳香族基である時である。

## 【0108】

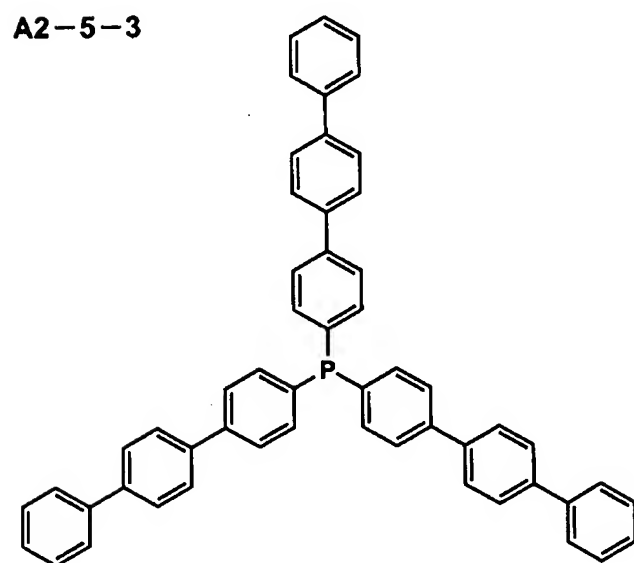
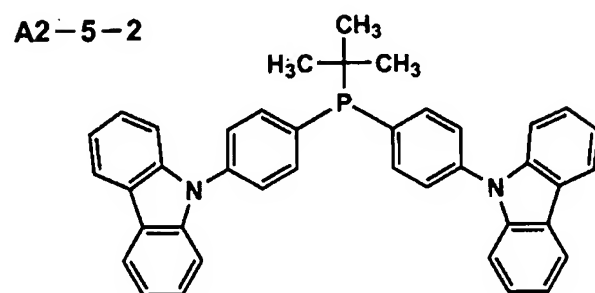
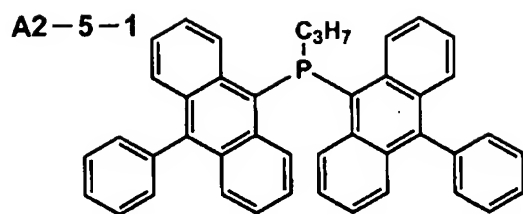
次に一般式(A2-6)について説明する。Pはリン原子を表し、 $R_{61}$ は一価の置換基をあらわし、 $X_{61}$ 、 $X_{62}$ 、 $X_{63}$ および $X_{64}$ はそれぞれ窒素原子またはC- $R_{62}$ をあらわす。 $X_{61}$ 、 $X_{62}$ 、 $X_{63}$ および $X_{64}$ の複数がC- $R_{62}$ であらわされるとき、それぞれは同じでも異なってもよい。 $R_{62}$ は一価の置換基をあらわす。一価の置換基としては一般式(A2-1)中の $R_{11}$ ～ $R_{15}$ と同様の置換基が挙げられる。好ましくは、一般式(A2-7)で表される時であり、より好ましくは、一般式(A2-7)中の $R_{71}$ が芳香族基である時である。

## 【0109】

以下に、具体的化合物例を示すが、本発明に係わるリン化合物が、これらに限定されるものではない。

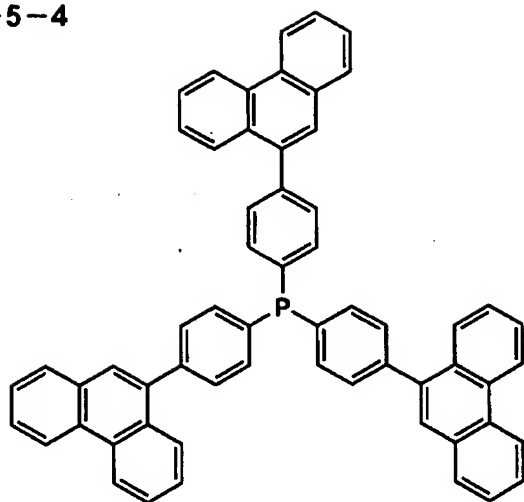
## 【0110】

## 【化163】



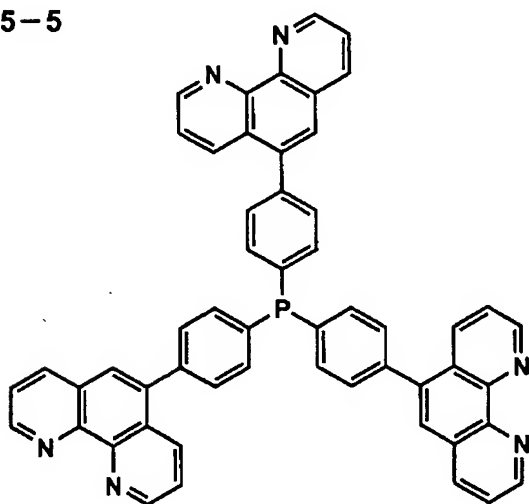
【 0 1 1 1 】  
【 化 1 6 4 】

A2-5-4



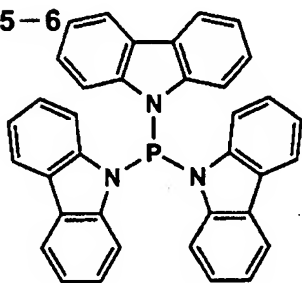
10

A2-5-5

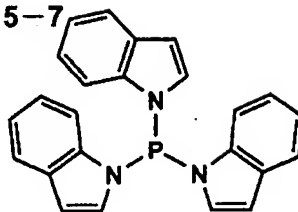


20

A2-5-6



A2-5-7



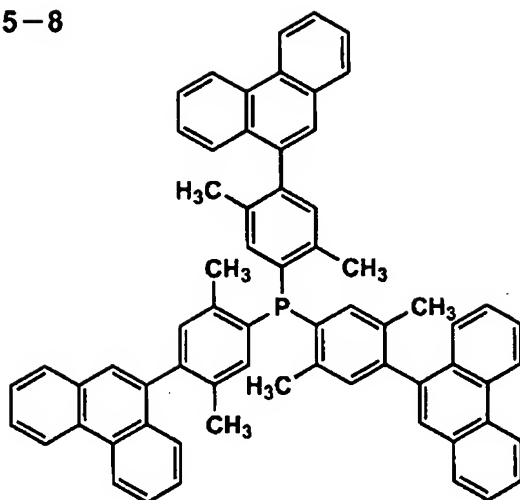
30

40

【0112】

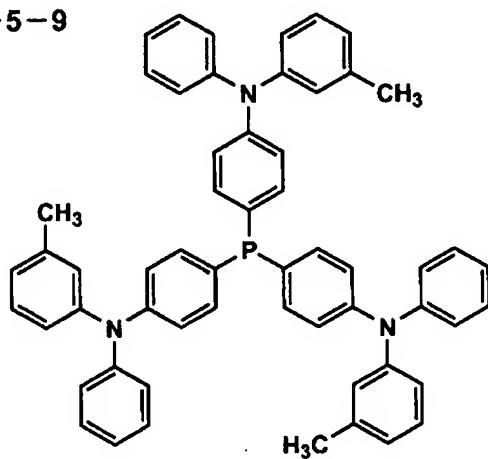
【化165】

A2-5-8



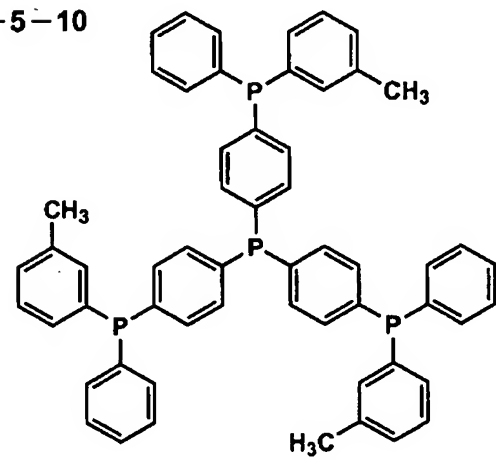
10

A2-5-9



20

A2-5-10

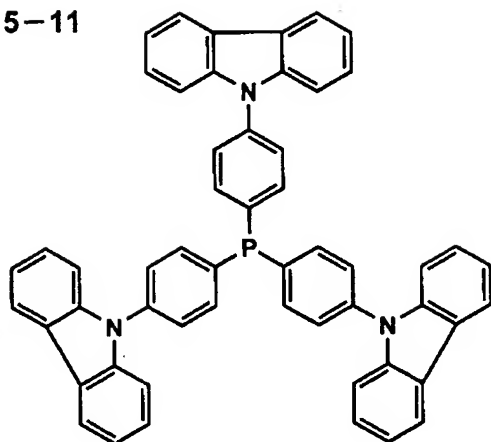


30

40

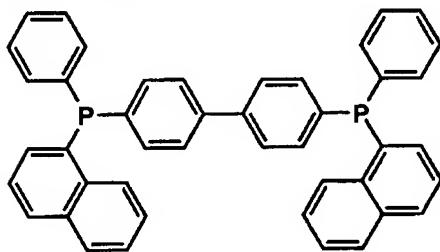
【 0 1 1 3 】  
【 化 1 6 6 】

A2-5-11

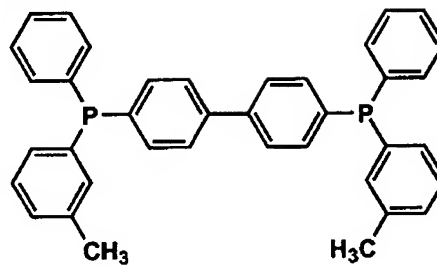


10

A2-5-12

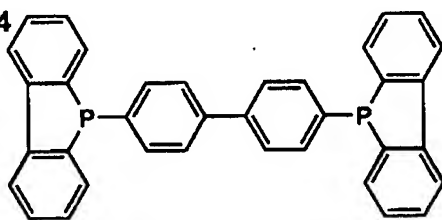


A2-5-13



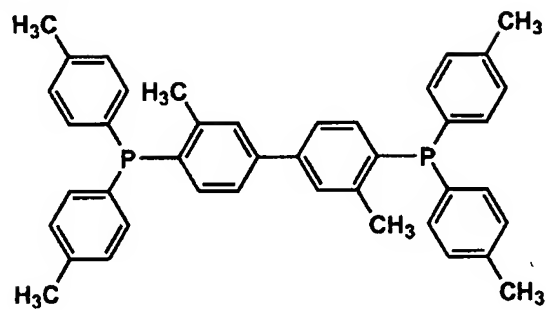
20

A2-5-14



30

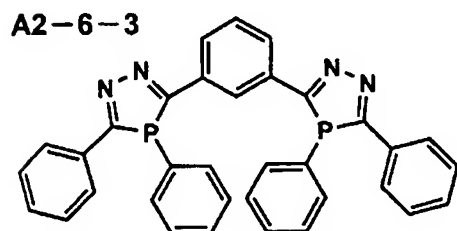
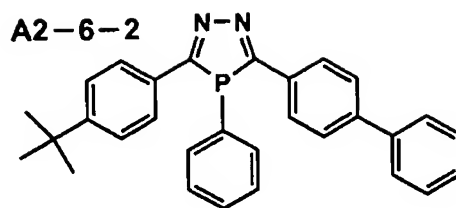
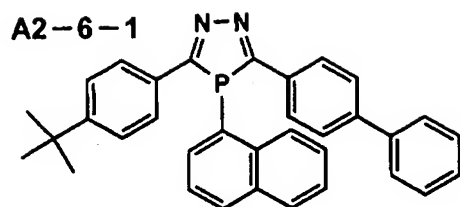
A2-5-15



40

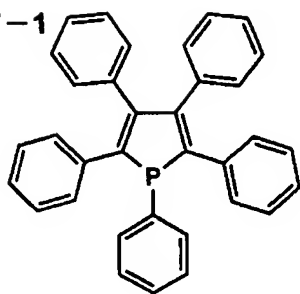
【 0 1 1 4 】

【 化 1 6 7 】

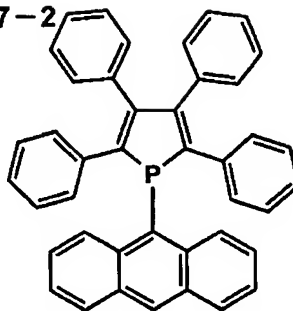




A2-7-1

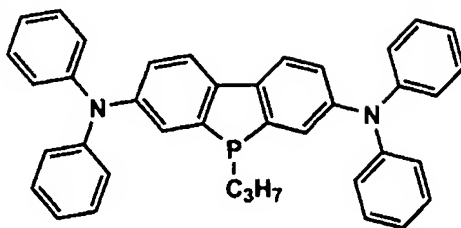


A2-7-2

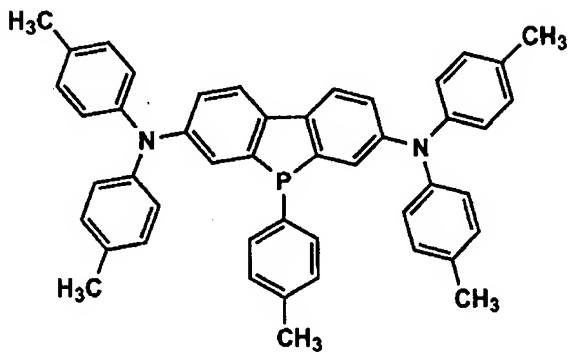


10

A2-7-3

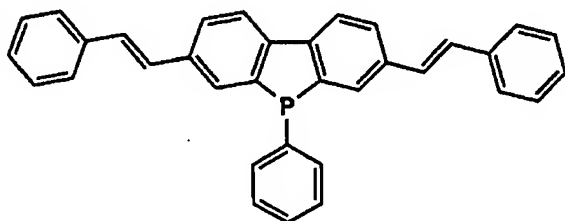


A2-7-4



20

A2-7-5



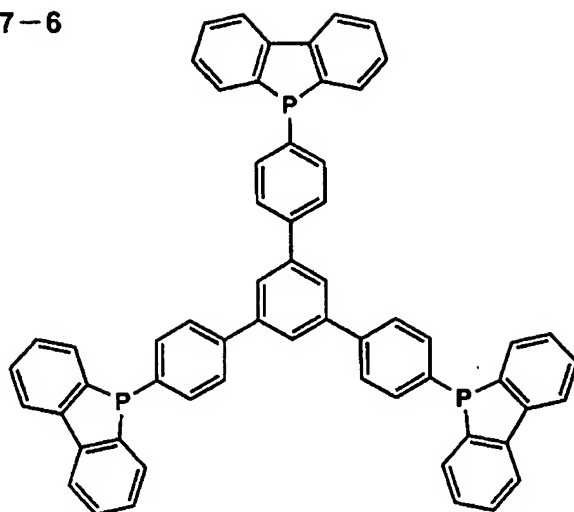
30

【0116】

【化169】

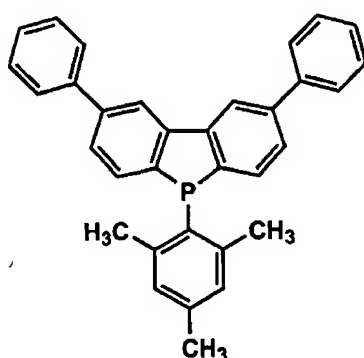
40

A2-7-6



10

A2-7-7



20

30

## 【0117】

以下に、一般式 (B1-1)、一般式 (B1-6)、一般式 (B1-11) 及び一般式 (B1-13) で表される化合物について詳しく説明する。

## 【0118】

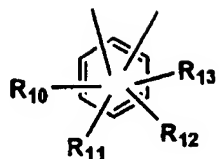
一般式 (B1-1) において、 $R_1 \sim R_4$  各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基 (メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基等)、シクロアルキル基 (シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等) 又はハロゲン原子 (弗素原子、塩素原子等) のうちいずれか1つの基を表し、 $Ar_1$  は2価の芳香族炭化水素基を表し、好ましくは一般式 (B1-3)、一般式 (B1-4)、一般式 (B1-5) のうちいずれか1つの基を表す。

40

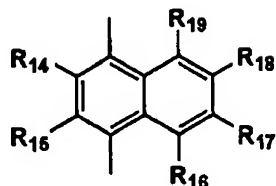
## 【0119】

## 【化170】

## 一般式(B1-3)

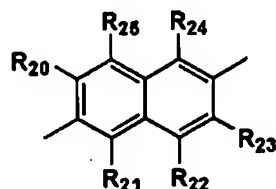


## 一般式(B1-4)



10

## 一般式(B1-5)



20

## 【0120】

Ar<sub>2</sub> は一般式 (B1-2) で表されるアリール基を表す。

## 【0121】

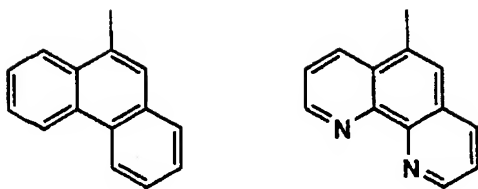
一般式 (B1-2) において R<sub>9</sub> は水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子のうちいずれか一つの基を表し、R<sub>5</sub> ~ R<sub>9</sub> 各々は、水素原子または置換基を表し、置換基は、ハロゲン原子（弗素原子、塩素原子等）、アルキル基（メチル、エチル、i-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、t-ブチル等）、シクロアルキル基（シクロペンチル、シクロヘキシル等）、アラルキル基（ベンジル、2-フェネチル等）、アリール基（フェニル、ナフチル、p-トリル、p-クロロフェニル等）、アルコキシ基（メトキシ、エトキシ、i-プロポキシ、ブトキシ等）、アリールオキシ基（フェノキシ等）、シアノ基、複素環基（ピロール、ピロリジル、ピラゾリル、イミダゾリル、ピリジル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、ベンゾオキサゾリル等）のうちいずれか1つの基が選ばれ、これらの基は更に置換されてもよい。また、R<sub>5</sub> と R<sub>6</sub>、R<sub>6</sub> と R<sub>7</sub>、R<sub>7</sub> と R<sub>8</sub>、R<sub>8</sub> と R<sub>9</sub> の置換基は互いに結合して環を形成してもよく、ベンゼン環とともに環を形成しても良い。（例えば、下記化171で示す、9-フェナンスリル基、9-フェナントロリル基の如く。）

30

40

## 【0122】

## 【化171】



## 【0123】

10

一般式 (B 1-3)、一般式 (B 1-4)、一般式 (B 1-5) において、 $R_{10} \sim R_{25}$  各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基 (メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基等)、シクロアルキル基 (シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等)、置換又は無置換のアリール基 (フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基、フェナンスリル基、アントリル基等)、ハロゲン原子 (弗素原子、塩素原子等) のうちいずれか 1 つの基を表す。

## 【0124】

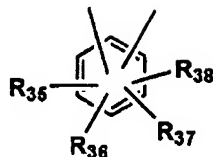
20

一般式 (B 1-6) において、 $R_{26} \sim R_{29}$  各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基 (メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基等)、シクロアルキル基 (シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等) 又はハロゲン原子 (弗素原子、塩素原子等) のうちいずれか 1 つの基を表し、 $Ar_3$  は 2 価の芳香族炭化水素基を表し、好ましくは一般式 (B 1-8)、一般式 (B 1-9)、一般式 (B 1-10) のうちいずれか 1 つの 2 価のアリーレン基を表す。

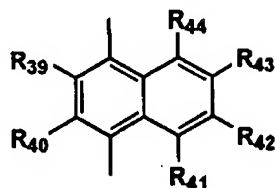
## 【0125】

## 【化172】

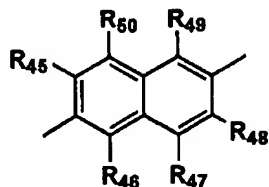
## 一般式(B1-8)



## 一般式(B1-9)



## 一般式(B1-10)



## 【0126】

Ar<sub>4</sub> は一般式 (B1-7) で表されるアリール基を表す。

## 【0127】

一般式 (B1-7) において R<sub>34</sub> は水素原子、置換又は無置換のアルキル基、シクロアルキル基、アルコキシ基又はハロゲン原子のうちいずれか一つを表し、R<sub>30</sub> ~ R<sub>33</sub> 各々は、水素原子または置換基を表し、置換基としては、ハロゲン原子 (弗素原子、塩素原子等)、アルキル基 (メチル、エチル、i-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、t-ブチル等)、シクロアルキル基 (シクロペンチル、シクロヘキシル等)、アラルキル基 (ベンジル、2-フェネチル等)、アリール基 (フェニル、ナフチル、p-トリル、p-クロロフェニル等)、アルコキシ基 (メトキシ、エトキシ、i-プロポキシ、ブトキシ等)、アリールオキシ基 (フェノキシ等)、シアノ基、複素環基 (ピロール、ピロリジル、ピラゾリル、イミダゾリル、ピリジル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、ベンゾオキサゾリル等) のうちいずれか1つの基で、これらの基は更に置換されてもよい。また、R<sub>30</sub> と R<sub>31</sub>、R<sub>31</sub> と R<sub>32</sub>、R<sub>32</sub> と R<sub>33</sub>、R<sub>33</sub> と R<sub>34</sub> の置換基は互いに結合して環を形成してもよく、ベンゼン環とともに縮合環を形成しても良い。

## 【0128】

一般式 (B1-8)、一般式 (B1-9)、一般式 (B1-10) において R<sub>35</sub> ~ R<sub>50</sub> 各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基 (メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基等)、シクロアルキル基 (シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、置換又は無置換のアリール基 (フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基、フェナンスリル基、アントリル基等) 又はハロゲン原子 (弗素原子、塩素原子等) のうちいずれか1つの基を表す。

## 【0129】

10

20

30

40

50

一般式 (B 1-11) において、 $R_{82} \sim R_{85}$  各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基 (メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基等)、シクロアルキル基 (シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等)、又はハロゲン原子 (弗素原子、塩素原子等) のうちいずれか1つの基を表し、 $X_1$  は一般式 (B 1-12) で表されるアリール基を表す。一般式 (B 1-12) において、 $R_{86}$  はアルキル基 (メチル、エチル、*i*-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、*t*-ブチル等)、アルコキシ基 (メトキシ、エトキシ、*i*-プロポキシ、ブトキシ等)、ハロゲン原子 (弗素原子、塩素原子等) のうちいずれか1つの置換基を表し、好ましくはメチル基、トリフルオロメチル基、弗素原子を表す。10  
 $R_{87} \sim R_{89}$  は各々、水素原子、置換又は無置換のアルキル基 (メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基等)、シクロアルキル基 (シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等)、置換又は無置換のアリール基 (フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基、フェナンスリル基、アントリル基等) 又はハロゲン原子 (弗素原子、塩素原子等) のうちいずれか1つを表す。 $Ar_8$  は芳香族炭化水素基を表し、芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基、フェナンスリル基、アントリル基等が挙げられ、それらは更に置換基を有していてもよく、それらの置換基のうち隣接する置換基は互いに結合して環を形成していても良い。好ましくは1-ナフチル基、9-フェナンスリル基を表す。20

#### 【0130】

一般式 (B 1-13) において、 $R_{90} \sim R_{93}$  各々は、水素原子、置換又は無置換のアルキル基 (メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基等)、シクロアルキル基 (シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等)、又はハロゲン原子 (弗素原子、塩素原子等) のうちいずれか1つの基を表し、 $X_2$  は一般式 (14) で表されるアリール基を表す。一般式 (B 1-14) において、 $R_{94}$  はアルキル基 (メチル、エチル、*i*-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、*t*-ブチル等)、アルコキシ基 (メトキシ、エトキシ、*i*-プロポキシ、ブトキシ等)、ハロゲン原子 (弗素原子、塩素原子等) のうちいずれか1つの置換基を表し、好ましくはメチル基、トリフルオロメチル基、弗素原子を表す。30  
 $R_{95} \sim R_{97}$  は各々、水素原子、置換又は無置換のアルキル基 (メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基等)、シクロアルキル基 (シクロプロピル基、シクロヘキシル基等)、アルコキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等)、置換又は無置換のアリール基 (フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基、フェナンスリル基、アントリル基等) 又はハロゲン原子 (弗素原子、塩素原子等) のうちいずれか1つを表す。 $Ar_9$  は芳香族炭化水素基を表し、芳香族炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基、フェナンスリル基、アントリル基等が挙げられ、それらは更に置換基を有していてもよく、それらの置換基のうち隣接する置換基は互いに結合して環を形成していても良い。好ましくは1-ナフチル基、9-フェナンスリル基を表す。40

#### 【0131】

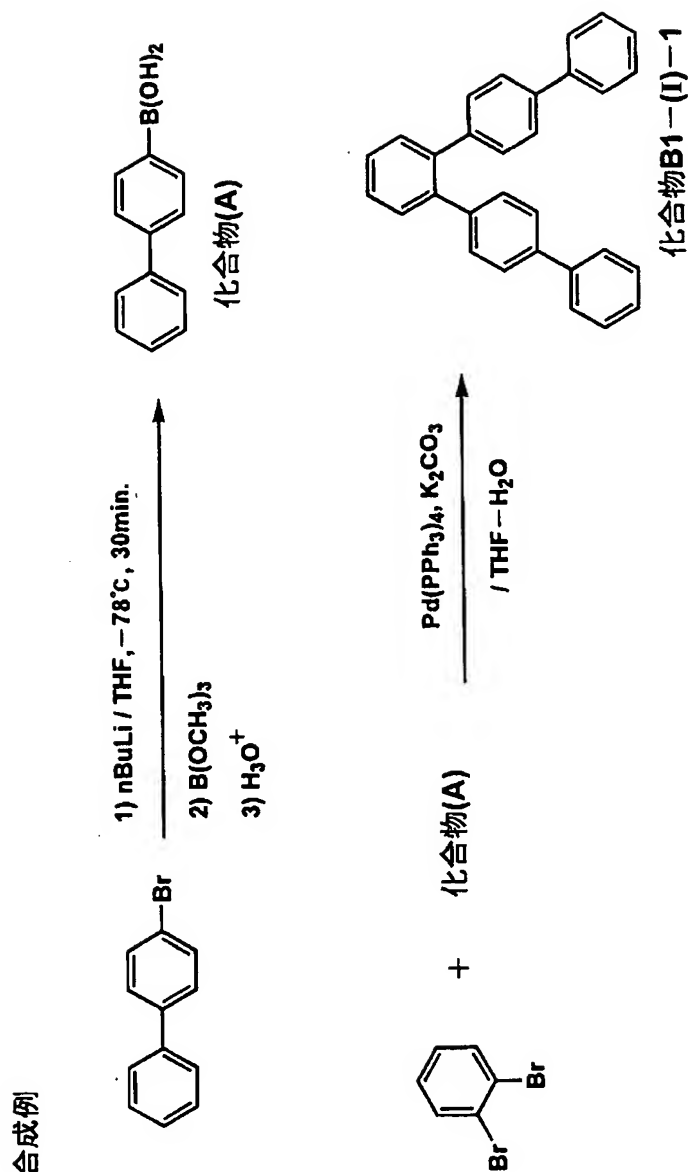
次に一般式 (B 1-1)、(B 1-6)、(B 1-11) 及び (B 1-13) で表される化合物の代表的な合成例を述べる。

#### 【0132】

〔合成例〕 化合物 B 1-(I)-1 の合成

#### 【0133】

#### 【化173】



## 【0134】

4-ブロモビフェニル 13.3 g を窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン 150 ml に溶解し、 $-78^\circ\text{C}$  で  $n$ -ブチルリチウム-ヘキサン (1.5 M/L) 溶液を 57.1 ml 滴下し、30 分攪拌後、トリメトキシボラン 12.8 ml のテトラヒドロフラン 50 ml 溶液を滴下した後、反応溶液に酸を加え、 $\text{pH} = 2$  にした。反応溶液を抽出、乾燥、濃縮、再結晶することで化合物 (A) を 8.62 g (収率 76%) 得た。

## 【0135】

次に化合物 (A) 3.44 g と 1,2-ジブロモベンゼン 1.86 g をテトラヒドロフラン-水 2 層系の溶媒中、炭酸カリウム 2.18 g、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム 910 mg の存在下、20 時間還流することで、化合物 B1-(I)-1 を 1.96 g (収率 65%) 得た。

## 【0136】

[合成例] 化合物 B1-(II)-32 の合成

## 【0137】

## 【化174】

10

20

30

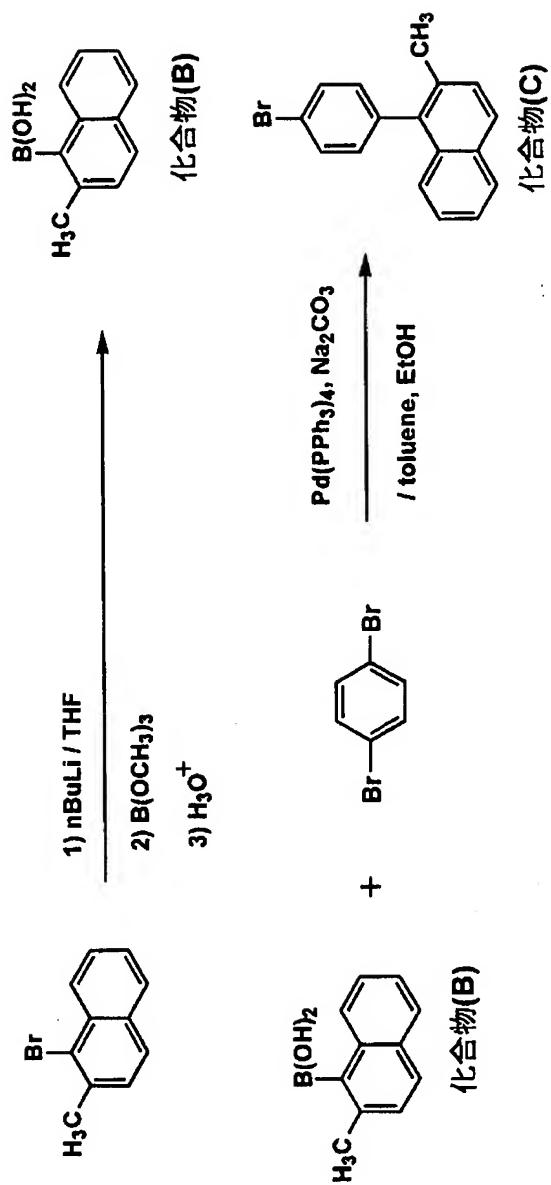
40

50

合成例

【0138】

【化175】

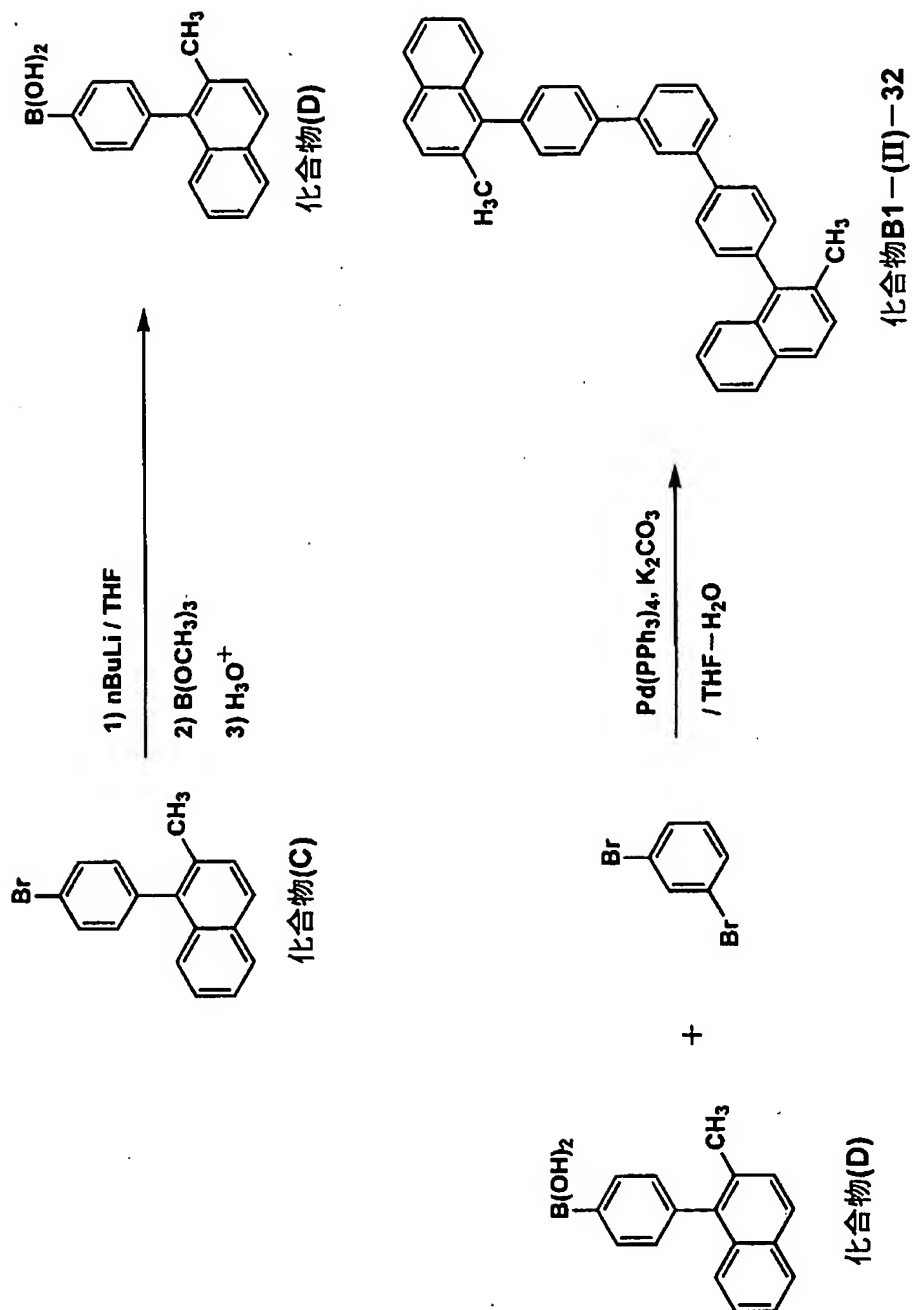


10

20

30





【0139】

1-ブromo-2-メチルナフタレン 20.0 g を窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン 100 ml に溶解し、 $-78^\circ\text{C}$  で  $n$ -ブチルリチウム-ヘキサン (1.5 M/L) 溶液を 90.5 ml 滴下し、30 分攪拌後、トリメトキシボラン 23.2 ml のテトラヒドロフラン 100 ml 溶液を滴下した後、反応溶液に酸を加え、 $\text{pH} = 2$  にした。反応溶液を抽出、乾燥、濃縮、再結晶することで化合物 (B) を 9.41 g (収率 56%) 得た。

【0140】

化合物 (B) 4.69 g と 1,4-ジブromoベンゼン 11.9 g をトルエン 60 ml とエタノール 10 ml の混合溶媒に加え、そこにテトラキストリフェニルホスフィンパラジウム 300 mg と 2 M/L の炭酸ナトリウム水溶液 25 ml を添加し、18 時間還流した。その後、抽出、乾燥、カラムクロマトグラフィーで精製、再結晶することで、化合物 (C)

）を6.60 g（収率88％）得た。

【0141】

次に化合物（C）6.37 gを窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン50 mlに溶解し、  
-78℃でn-ブチルリチウム-ヘキサン（1.5 M/L）溶液を21.4 ml滴下し、  
30分攪拌後、トリメトキシボラン5.50 mlのテトラヒドロフラン20 ml溶液を滴  
下した後、反応溶液に酸を加え、pH=2にした。反応溶液を抽出、乾燥、濃縮、再結晶  
することで化合物（D）を3.93 g（収率70％）得た。

【0142】

化合物（D）3.14 gと1,3-ジブロモベンゼン1.28 gをテトラヒドロフラン-  
水2層系の溶媒中、炭酸カリウム3.31 g、テトラキストリフェニルホスフィンパラジ  
ウム629 mgの存在下、20時間還流することで化合物B1-（II）-32を1.5  
0 g（収率54％）得た。

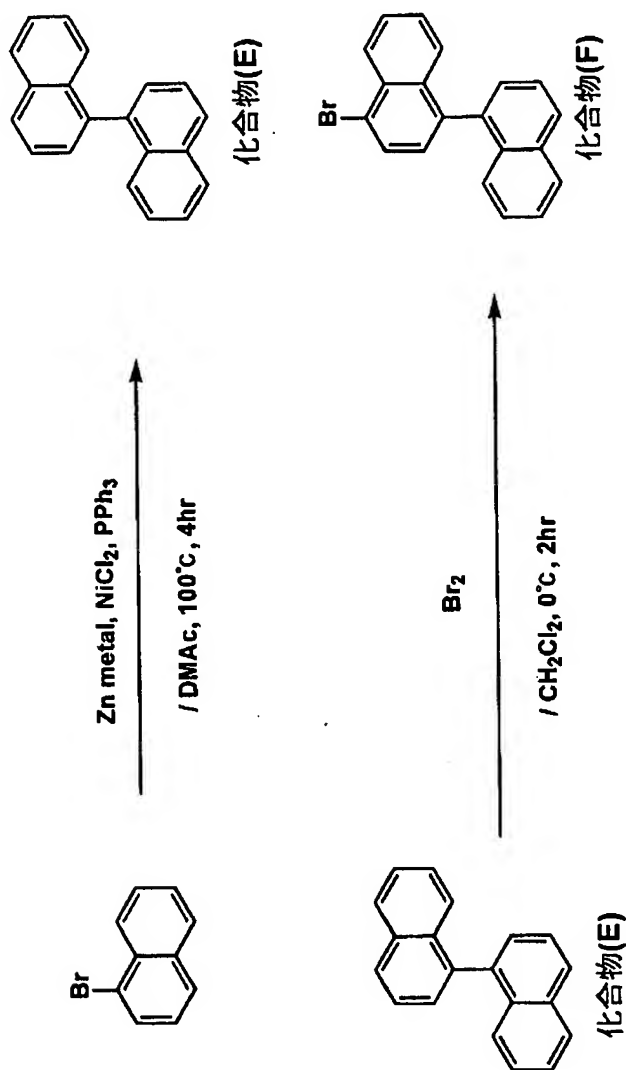
【0143】

〔合成例〕 化合物B1-（II）-39の合成

【0144】

【化176】

合成例



20

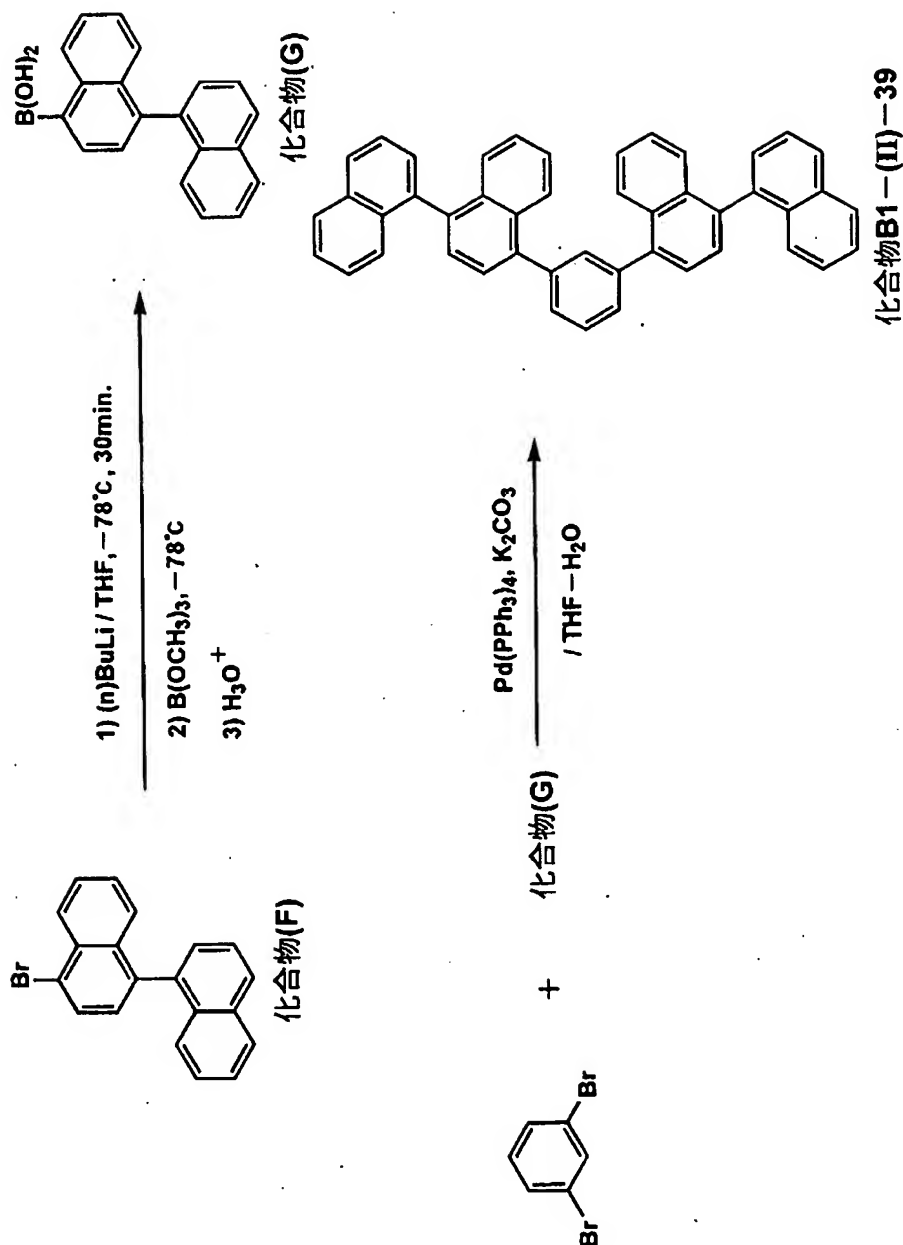
30

40

50

【0145】

【化177】



10

20

30

【0146】

トリフェニルホスフィン 31.0 g、塩化ニッケル 7.65 g 及び金属亜鉛 19.3 g を窒素雰囲気下脱水ジメチルアセトン 100 ml に加えて攪拌下加熱し、100度で1-ブロモナフチル 61.1 g を 50 ml の脱水ジメチルアセトンに溶かした溶液を滴下した。続いて4時間100度で加熱攪拌し、反応液を中和、抽出、乾燥、濃縮、再結晶することで、化合物(E)を84 g (56%) 得た。

【0147】

次に化合物(E) 70 g を塩化メチレン 800 ml に溶かし、氷冷し、0度で臭素 43.9 g を塩化メチレン 100 ml に溶かした溶液を液体クロマトグラフィーで反応追跡しながら滴下した。反応液を洗浄、抽出、乾燥、濃縮、再結晶することで化合物(F)を79.2 g (収率 86%) 得た。

40

50

## 【0148】

化合物(F) 50 gを窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン200 mlに溶解し、 $-78^{\circ}\text{C}$ でn-ブチルリチウム-ヘキサン(1.5 M/L)溶液を100 ml滴下し、30分攪拌後、トリメトキシボラン20 mlのテトラヒドロフラン30 ml溶液を滴下した後、反応溶液に酸を加え、 $\text{pH}=2$ にした。反応溶液を抽出、乾燥、濃縮、再結晶することで化合物(G)を33.8 g(収率76%)得た。

## 【0149】

化合物(G) 4.47 gと1,3-ジブromoベンゼン1.61 gをテトラヒドロフラン-水2層系の溶媒中、炭酸カリウム4.14 g、テトラキストリフェニルホスフィンパラジウム790 mgの存在下、20時間還流することで化合物B1-(II)-39を2.31 g(収率58%)得た。 10

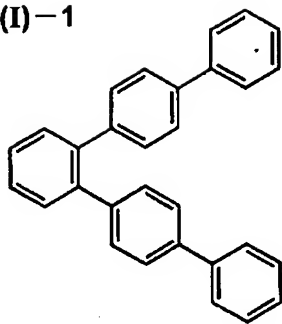
## 【0150】

以下に、本発明における一般式(B1-1)、(B1-6)、(B1-11)及び(B1-13)で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

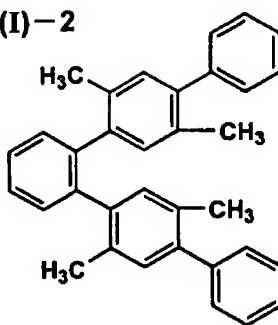
## 【0151】

## 【化178】

B1-(I)-1

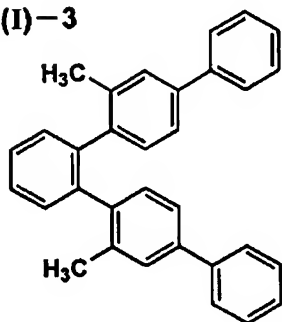


B1-(I)-2

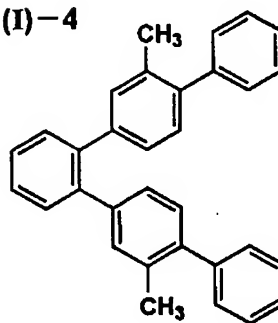


10

B1-(I)-3

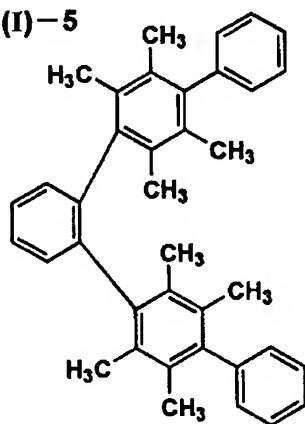


B1-(I)-4

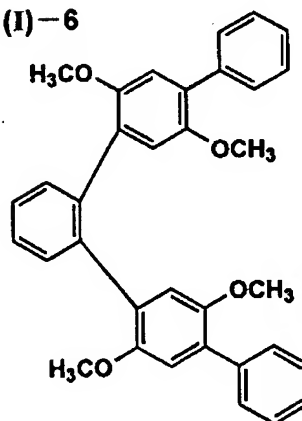


20

B1-(I)-5



B1-(I)-6

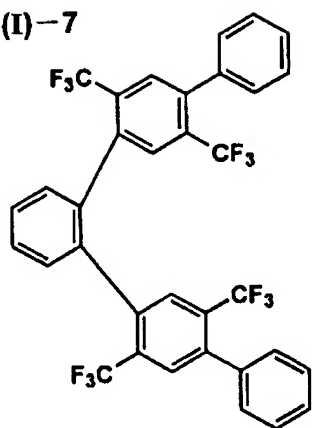


30

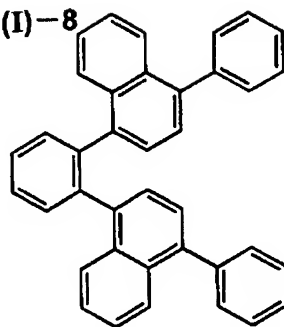
【 0 1 5 2 】

【 化 1 7 9 】

B1-(I)-7

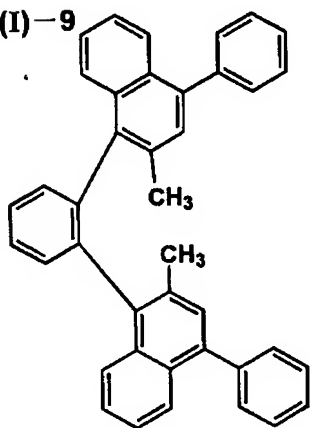


B1-(I)-8

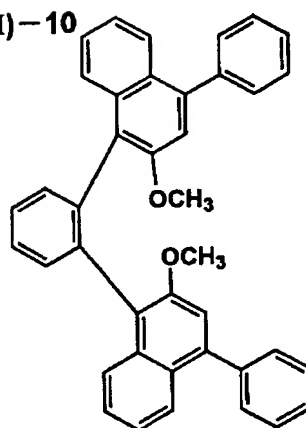


10

B1-(I)-9

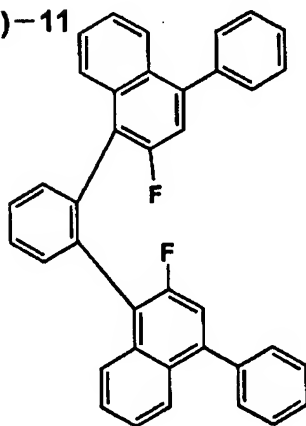


B1-(I)-10

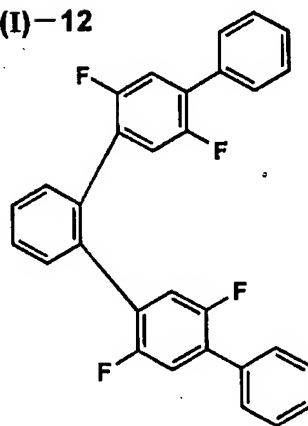


20

B1-(I)-11



B1-(I)-12

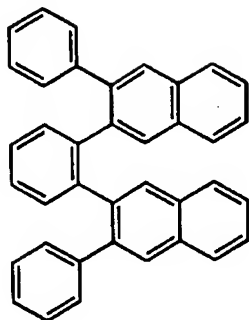
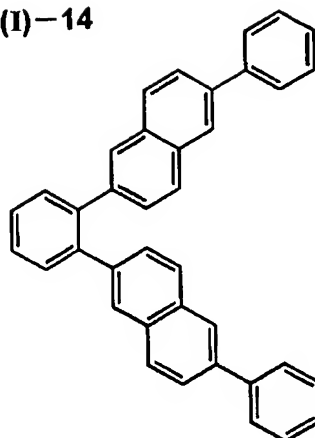


30

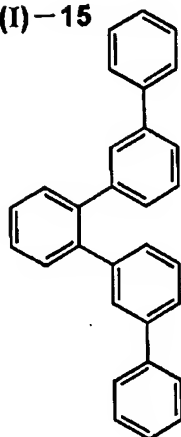
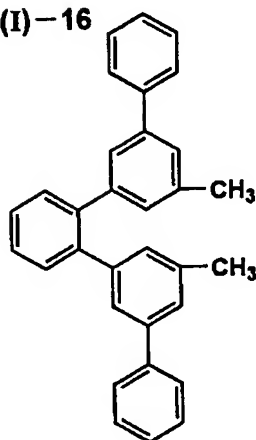
40

【 0 1 5 3 】

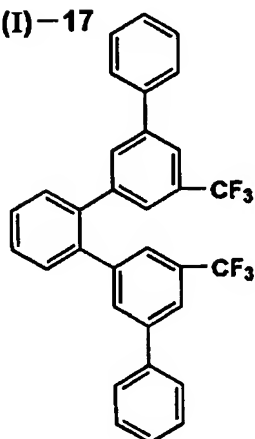
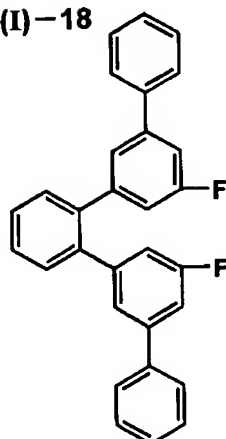
【 化 1 8 0 】

**B1-(I)-13****B1-(I)-14**

10

**B1-(I)-15****B1-(I)-16**

20

**B1-(I)-17****B1-(I)-18**

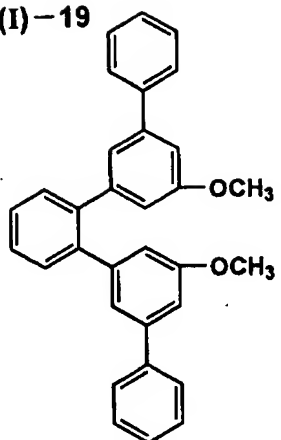
30

40

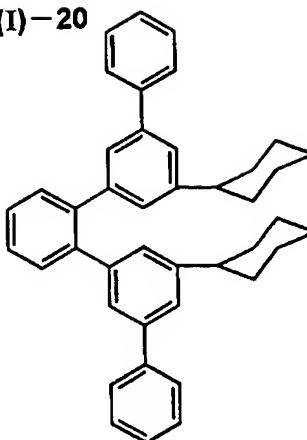
【 0 1 5 4 】

【 化 1 8 1 】

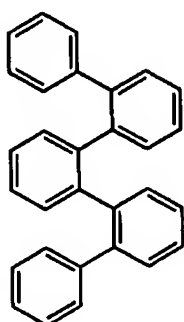
B1-(I)-19



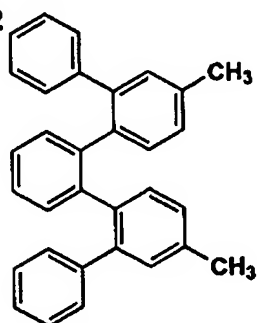
B1-(I)-20



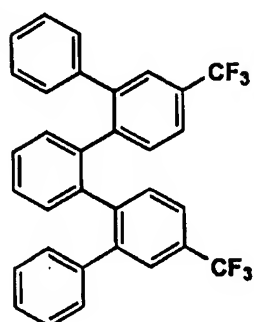
B1-(I)-21



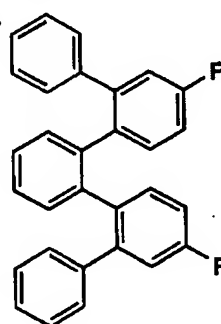
B1-(I)-22



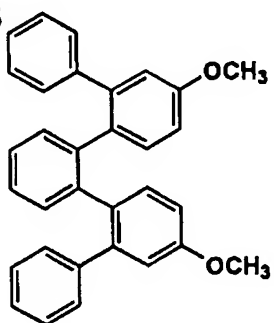
B1-(I)-23



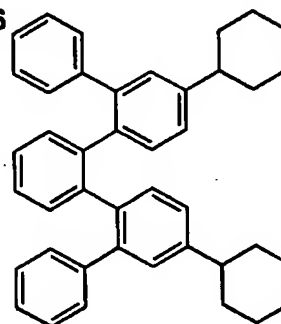
B1-(I)-24



B1-(I)-25



B1-(I)-26



【 0 1 5 5 】  
【 化 1 8 2 】

10

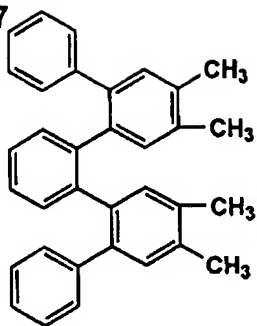
20

30

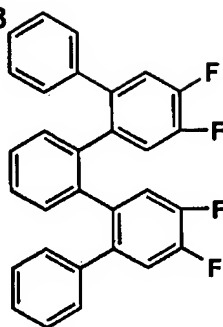
40



B1-(I)-27

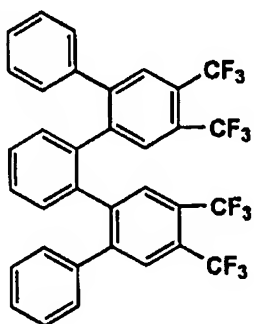


B1-(I)-28

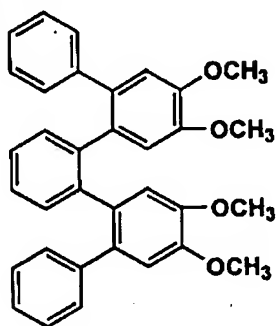


10

B1-(I)-29

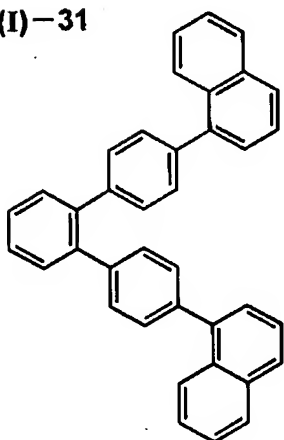


B1-(I)-30

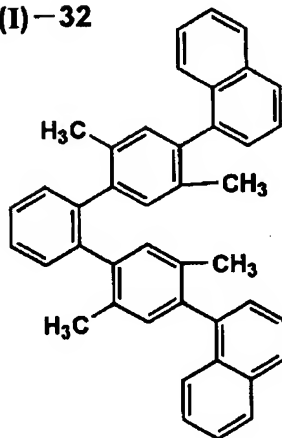


20

B1-(I)-31



B1-(I)-32

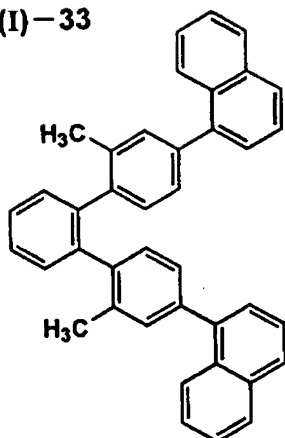


30

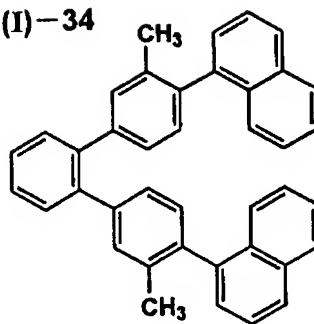
【 0 1 5 6 】

【 化 1 8 3 】

B1-(I)-33

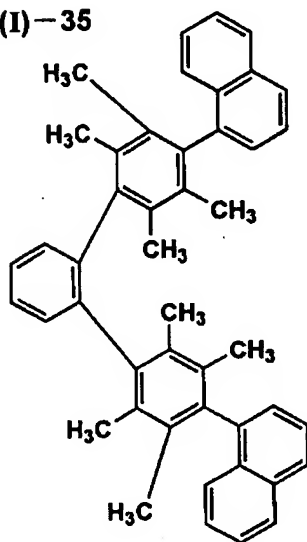


B1-(I)-34

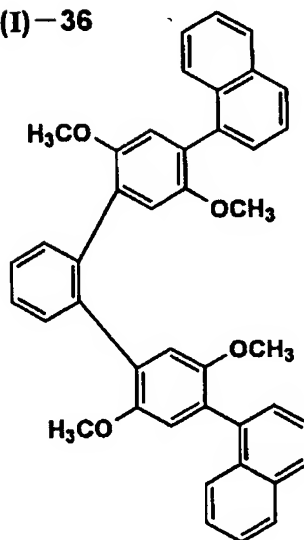


10

B1-(I)-35



B1-(I)-36



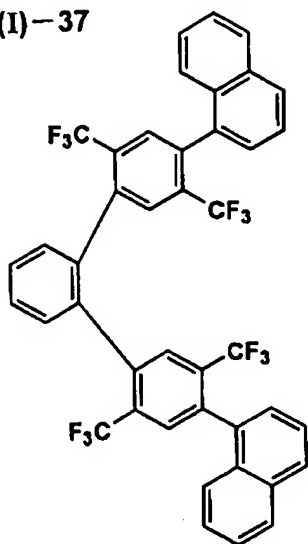
20

30

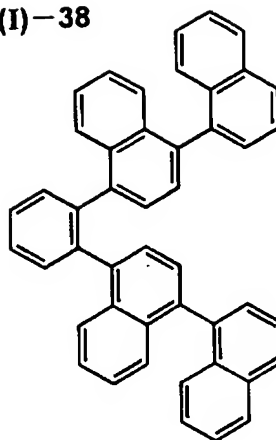
【 0 1 5 7 】

【 化 1 8 4 】

B1-(I)-37

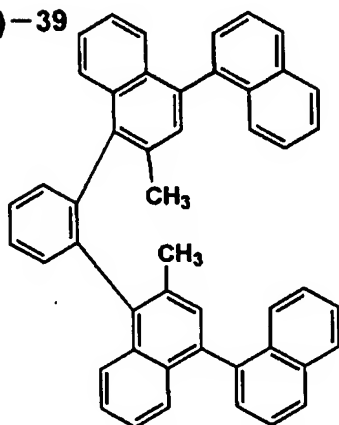


B1-(I)-38

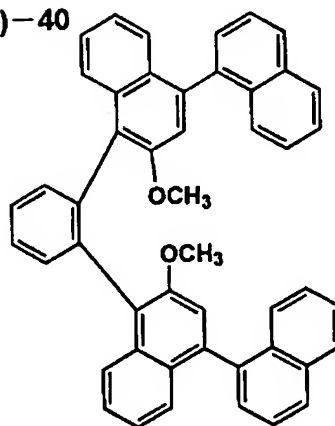


10

B1-(I)-39



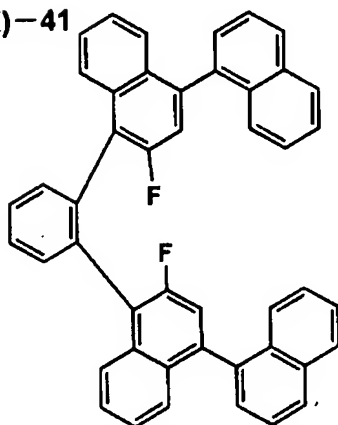
B1-(I)-40



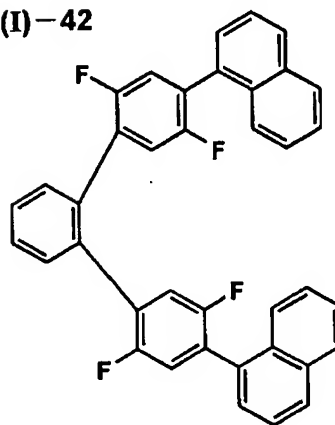
20

30

B1-(I)-41

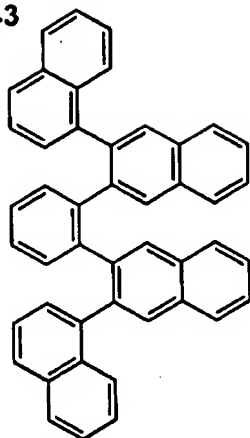
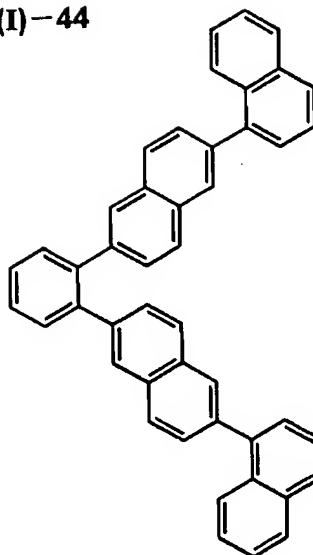


B1-(I)-42

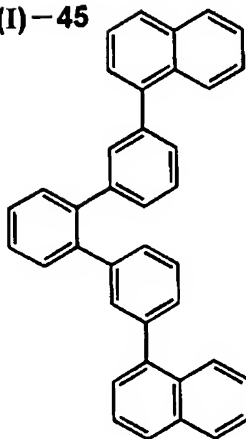


40

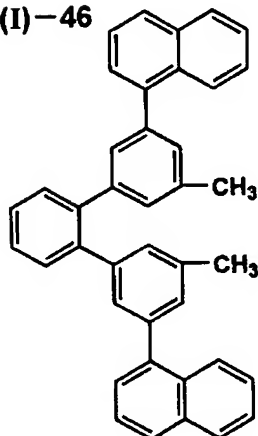
[ 0 1 5 8 ]  
[ 化 1 8 5 ]

**B1-(I)-43****B1-(I)-44**

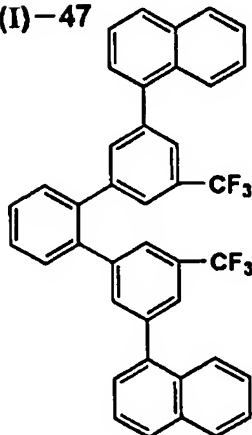
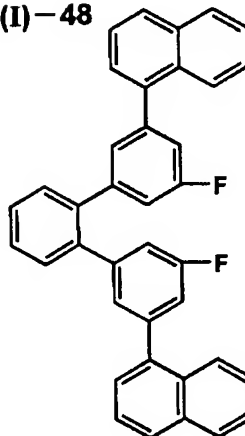
10

**B1-(I)-45**

20

**B1-(I)-46**

30

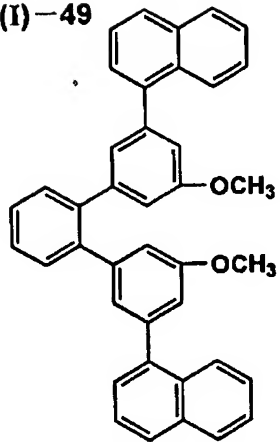
**B1-(I)-47****B1-(I)-48**

40

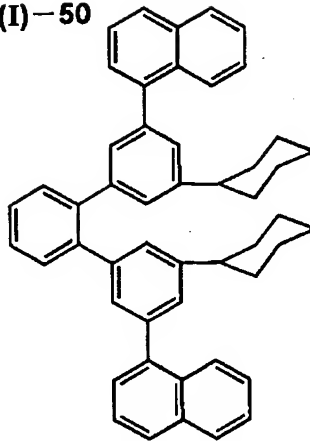
【 0 1 5 9 】

【 化 1 8 6 】

B1-(I)-49

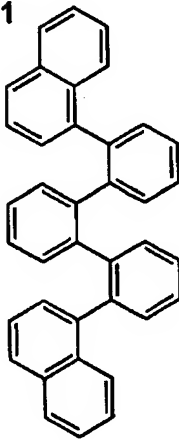


B1-(I)-50

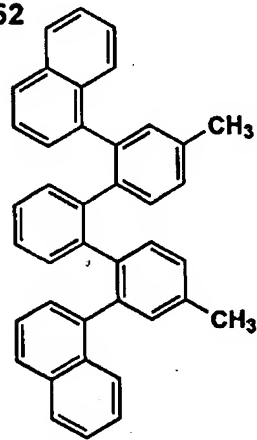


10

B1-(I)-51

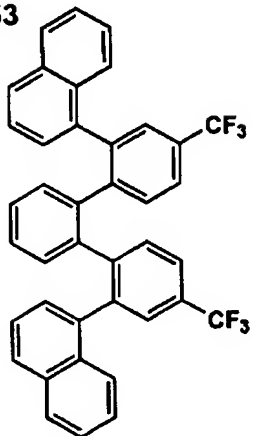


B1-(I)-52

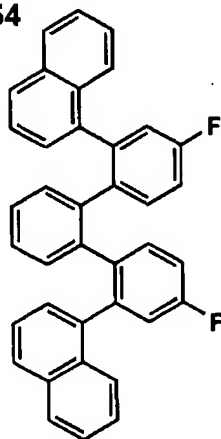


20

B1-(I)-53



B1-(I)-54



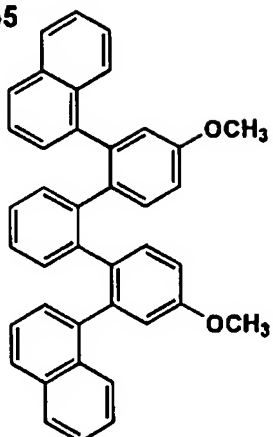
30

40

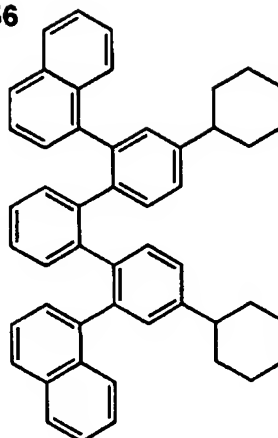
【 0 1 6 0 】

【 化 1 8 7 】

B1-(I)-55

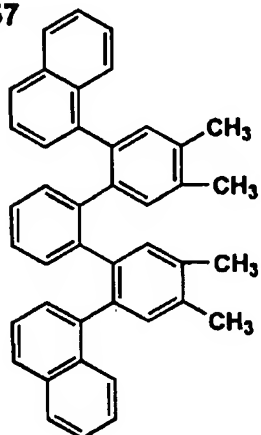


B1-(I)-56

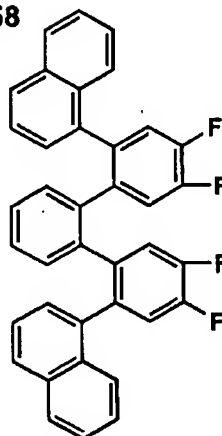


10

B1-(I)-57

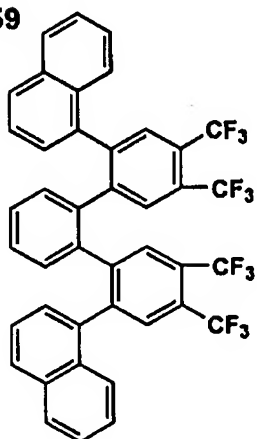


B1-(I)-58

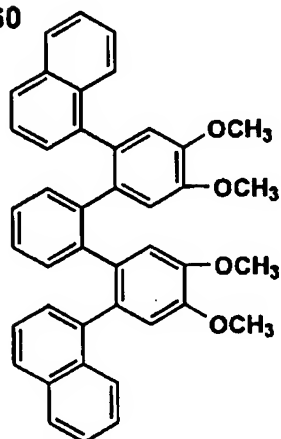


20

B1-(I)-59



B1-(I)-60

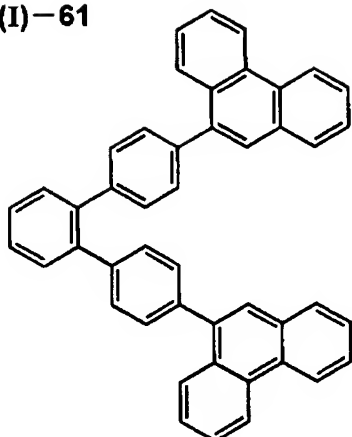


30

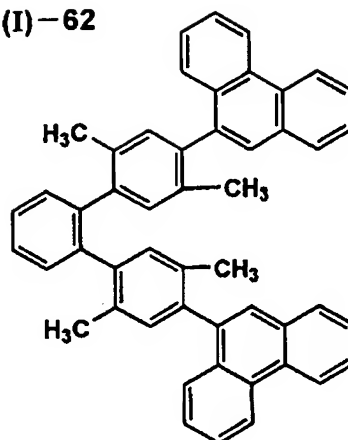
40

【 0 1 6 1 】  
【 化 1 8 8 】

B1-(I)-61

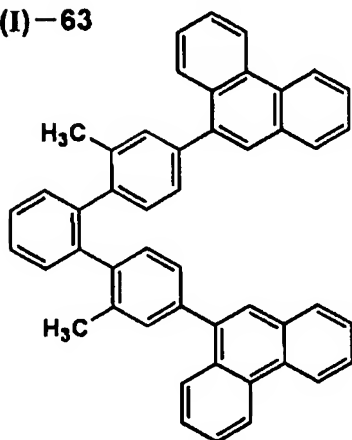


B1-(I)-62

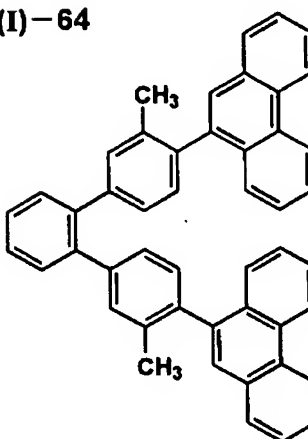


10

B1-(I)-63

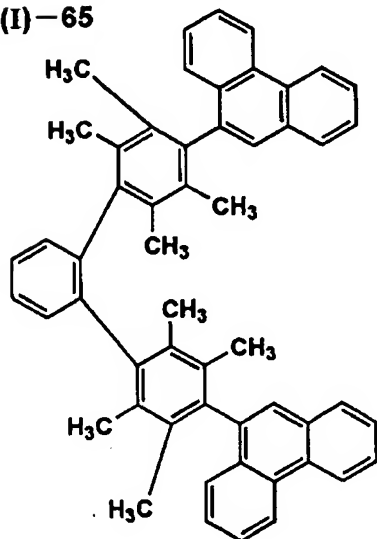


B1-(I)-64

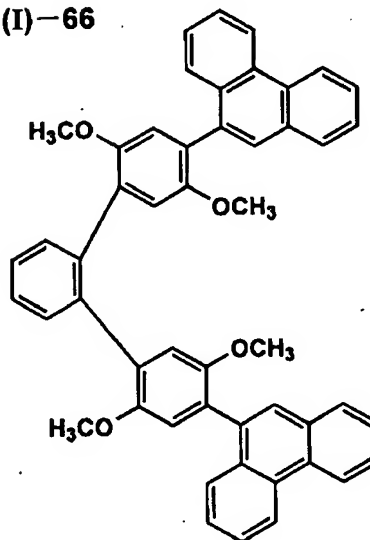


20

B1-(I)-65



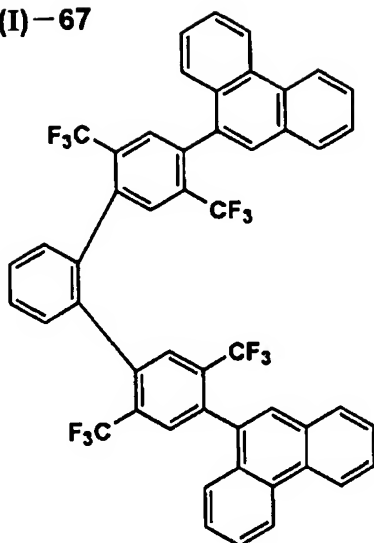
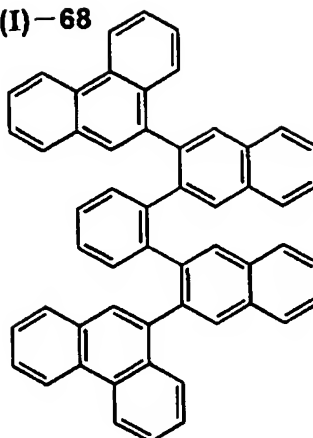
B1-(I)-66



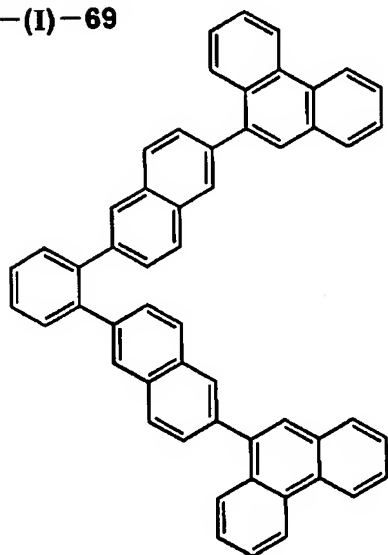
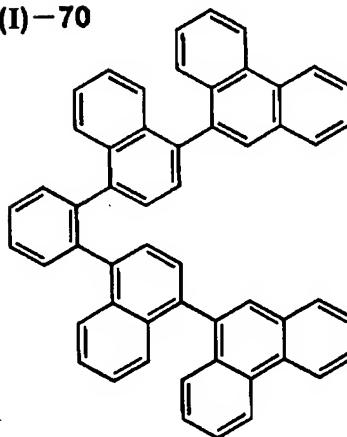
30

40

【 0 1 6 2 】  
【 化 1 8 9 】

**B1-(I)-67****B1-(I)-68**

10

**B1-(I)-69****B1-(I)-70**

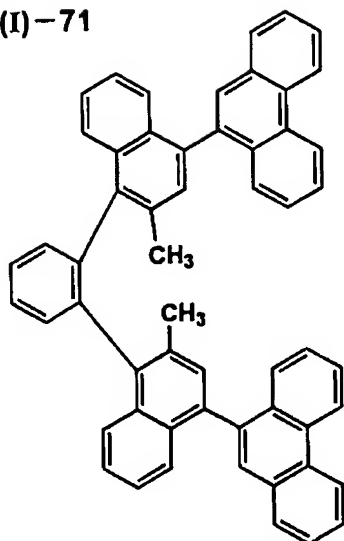
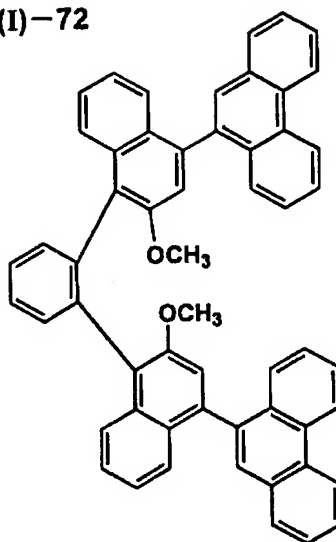
20

30

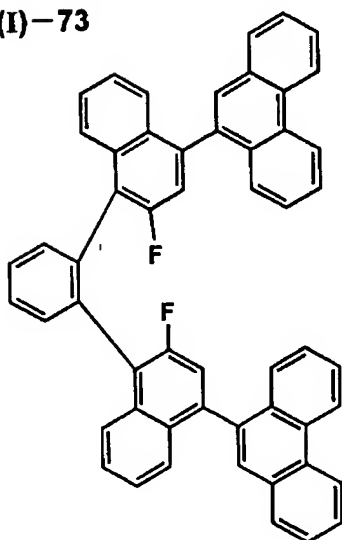
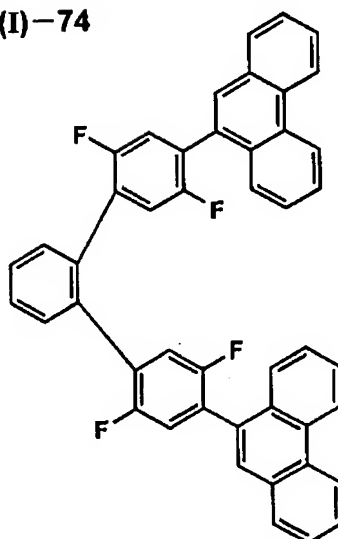
【 0 1 6 3 】

【 化 1 9 0 】



**B1-(I)-71****B1-(I)-72**

10

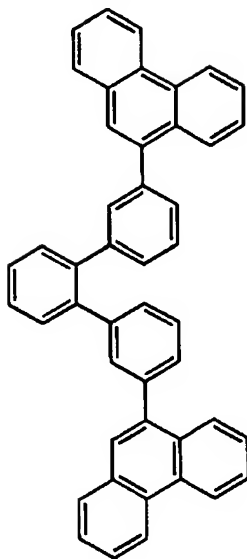
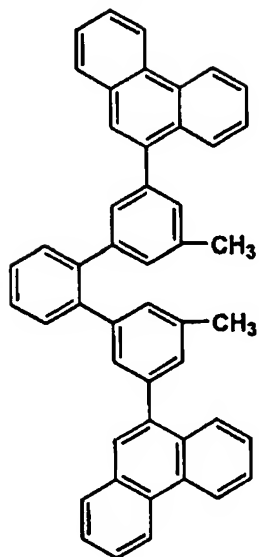
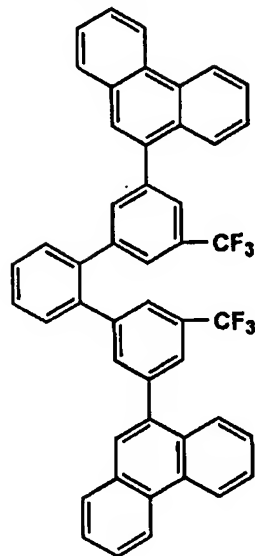
**B1-(I)-73****B1-(I)-74**

20

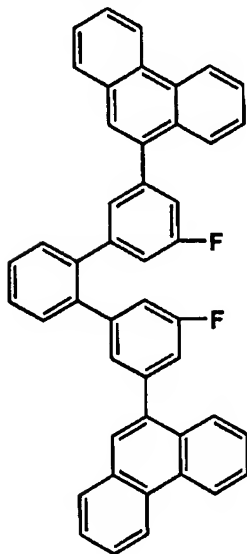
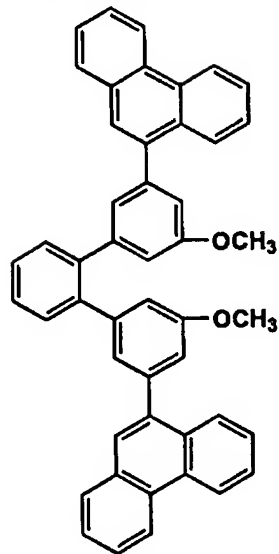
30

【 0 1 6 4 】

【 化 1 9 1 】

**B1-(I)-75****B1-(I)-76****B1-(I)-77**

10

**B1-(I)-78****B1-(I)-79**

20

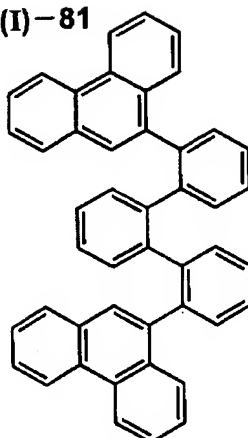
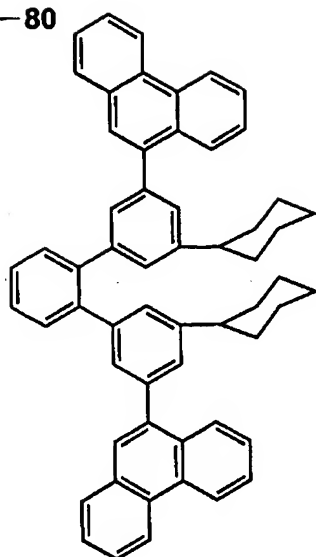
30

【 0 1 6 5 】

【 化 1 9 2 】

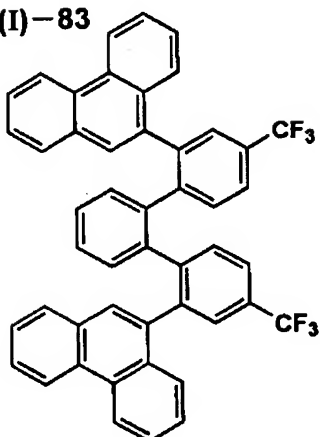
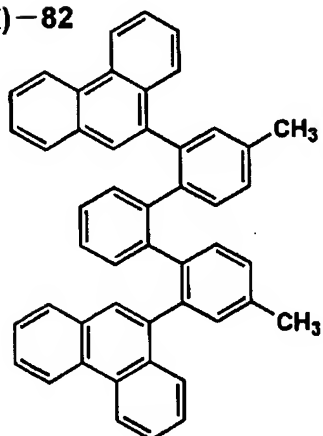
40

**B1-(I)-81**



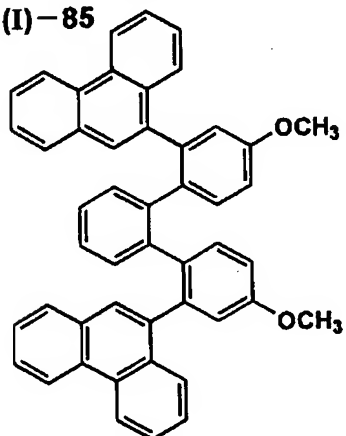
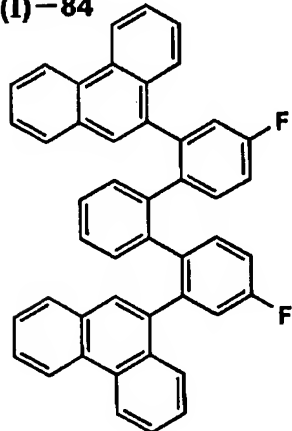
10

**B1-(I)-83**



20

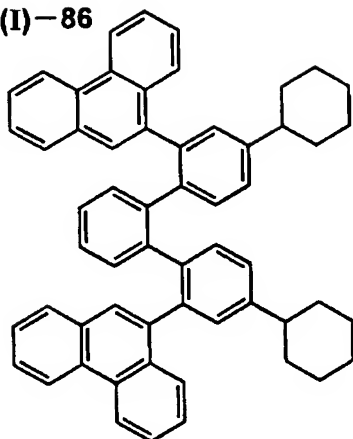
**B1-(I)-85**



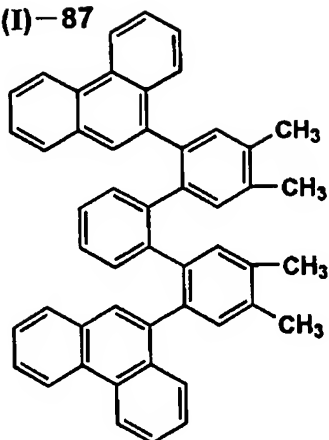
30

40

B1-(I)-86

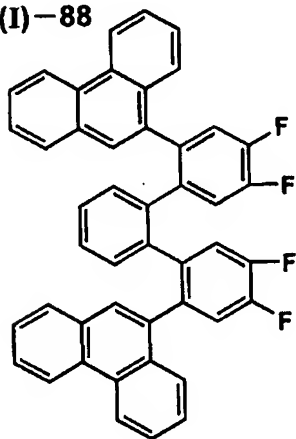


B1-(I)-87

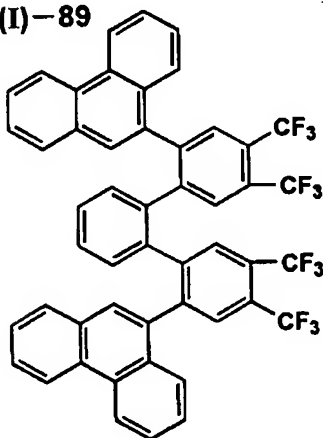


10

B1-(I)-88

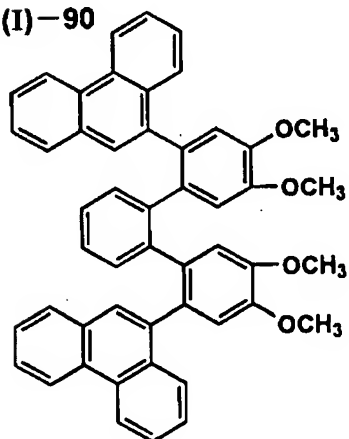


B1-(I)-89

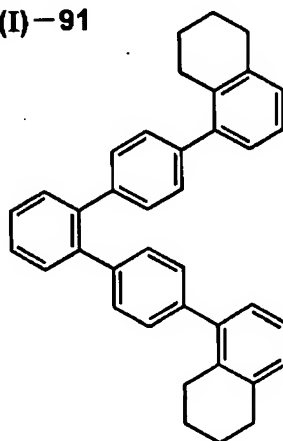


20

B1-(I)-90



B1-(I)-91



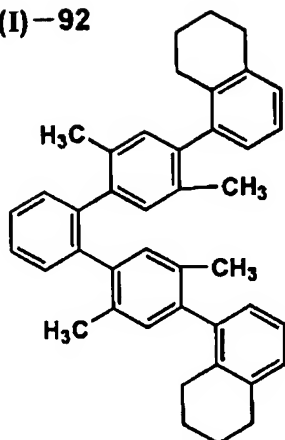
30

40

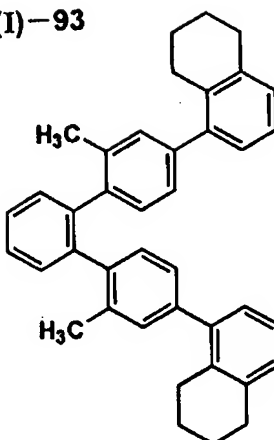
【 0 1 6 7 】

【 化 1 9 4 】

B1-(I)-92

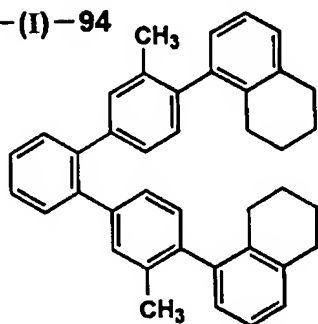


B1-(I)-93

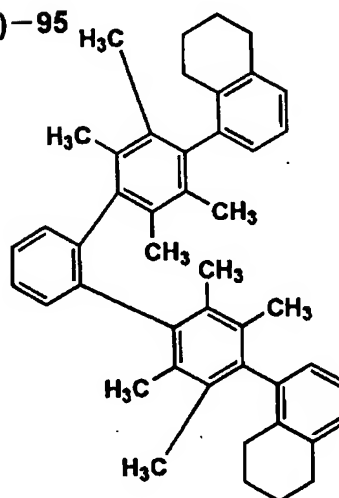


10

B1-(I)-94

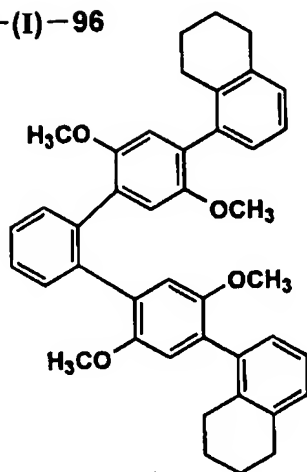


B1-(I)-95

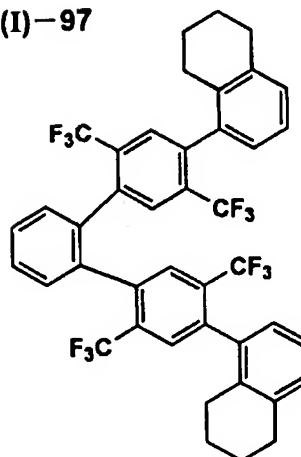


20

B1-(I)-96

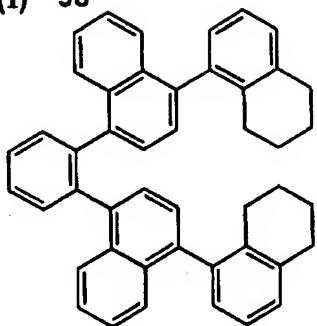
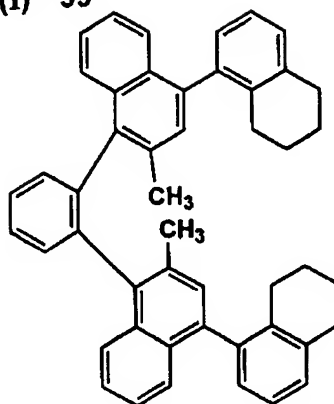


B1-(I)-97

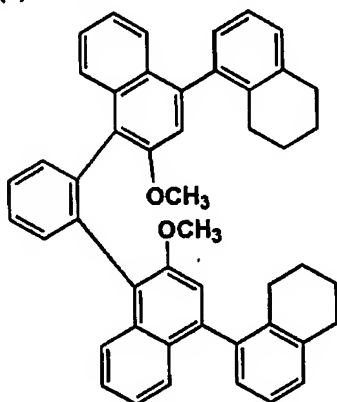
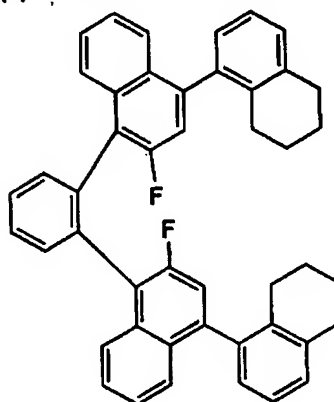


30

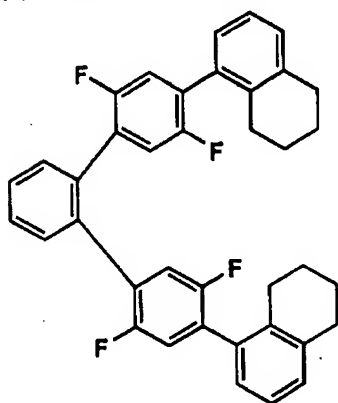
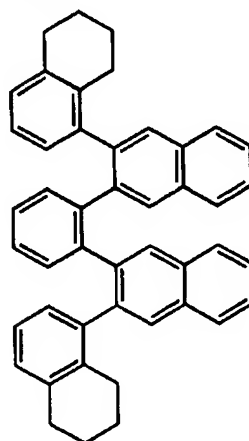
40

**B1-(I)-98****B1-(I)-99**

10

**B1-(I)-100****B1-(I)-101**

20

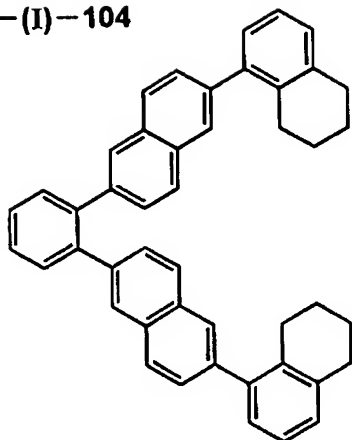
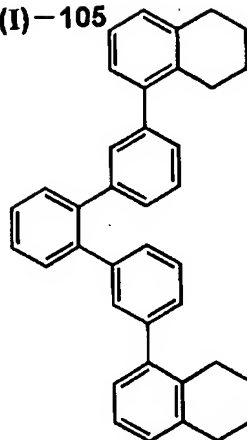
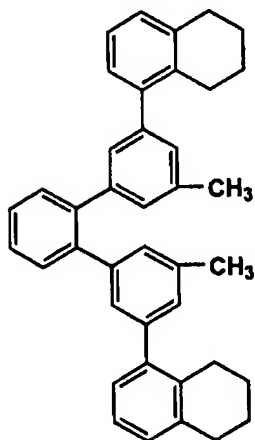
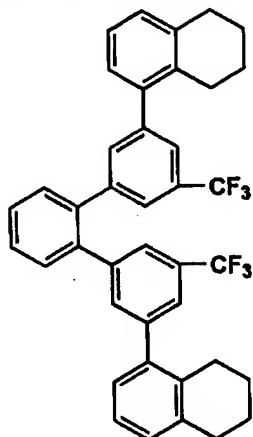
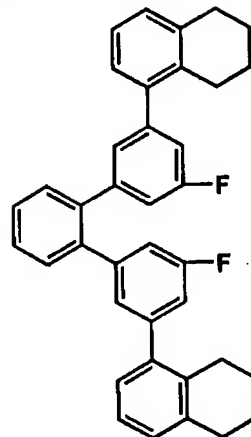
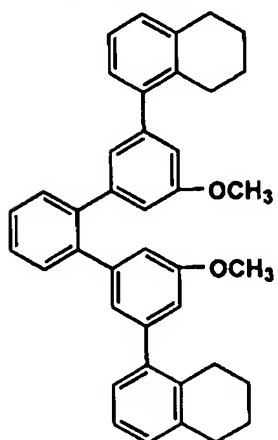
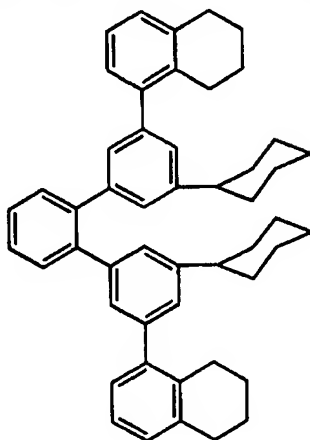
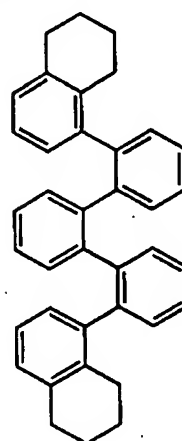
**B1-(I)-102****B1-(I)-103**

30

40

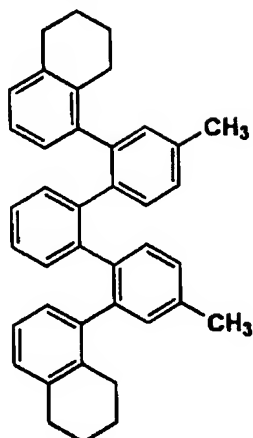
【 0 1 6 9 】

【 化 1 9 6 】

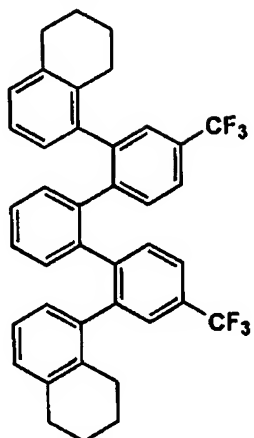
**B1-(I)-104****B1-(I)-105****B1-(I)-106****B1-(I)-107****B1-(I)-108****B1-(I)-109****B1-(I)-110****B1-(I)-111**

【 0 1 7 0 】  
【 化 1 9 7 】

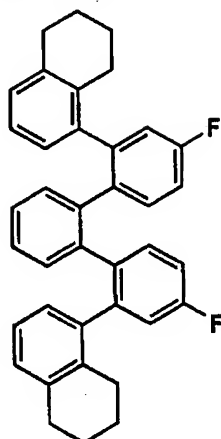
B1-(I)-112



B1-(I)-113

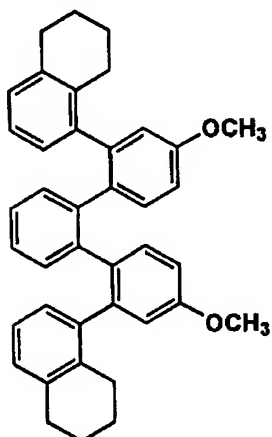


B1-(I)-114

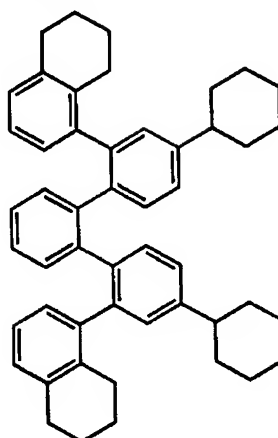


10

B1-(I)-115

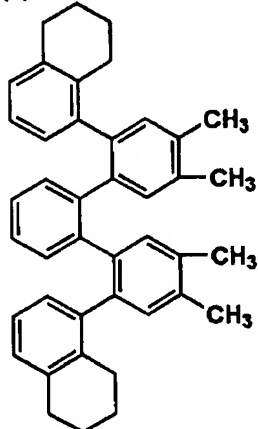


B1-(I)-116

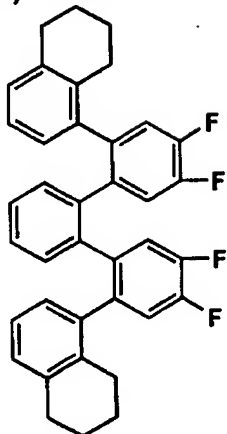


20

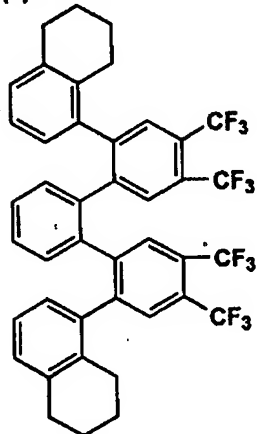
B1-(I)-117



B1-(I)-118



B1-(I)-119

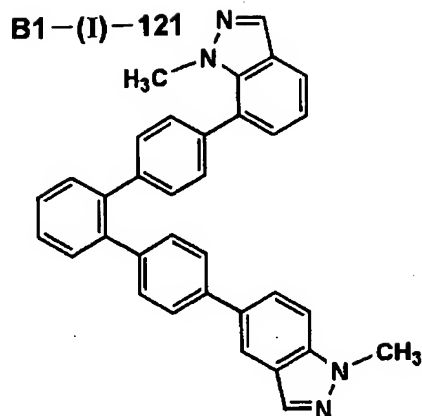


30

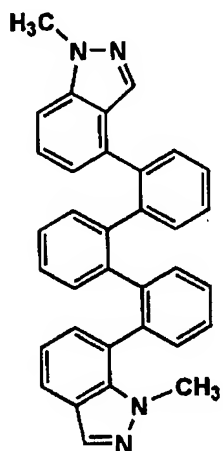
40



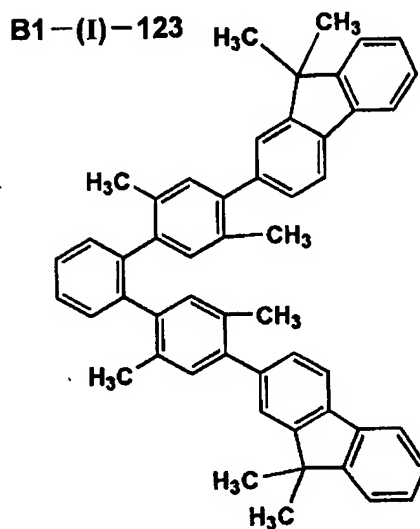
**B1-(I)-121**



10

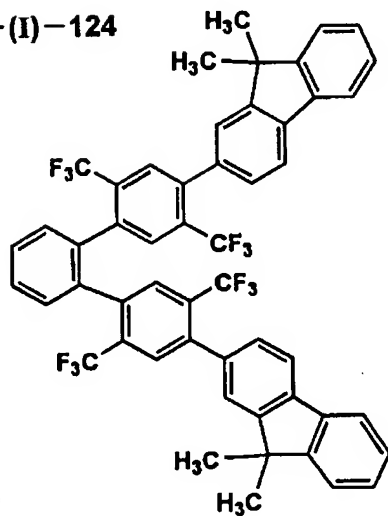
 $\text{H}_3\text{C}-$ 

**B1-(I)-123**



20

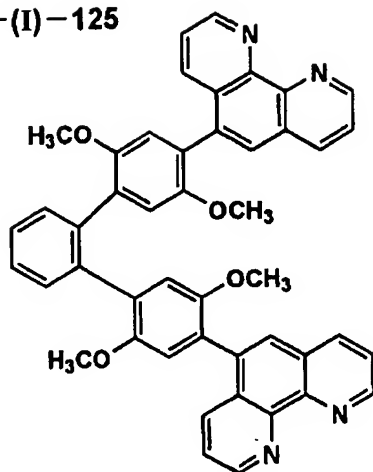
**B1-(I)-124**



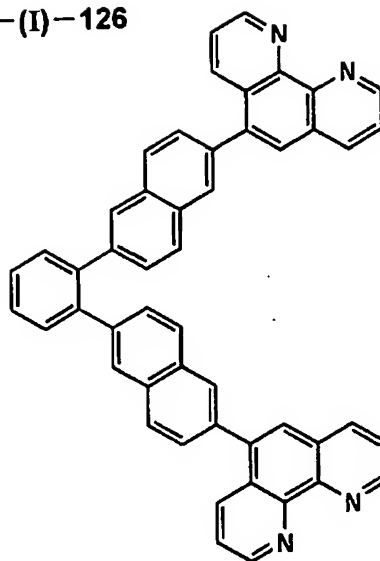
30

40

B1-(I)-125

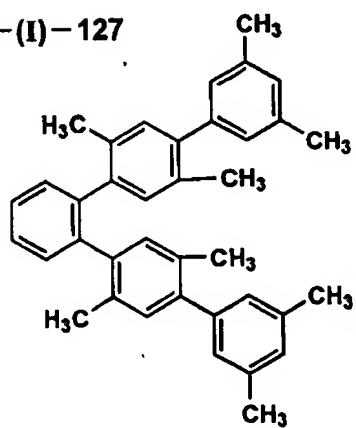


B1-(I)-126

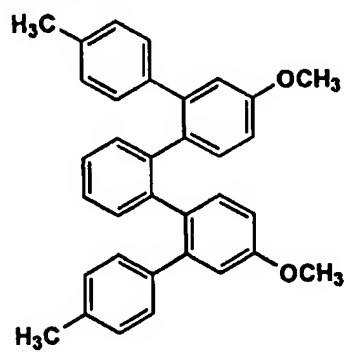


10

B1-(I)-127



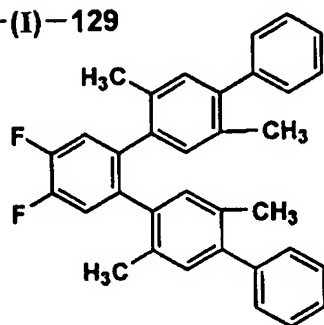
B1-(I)-128



20

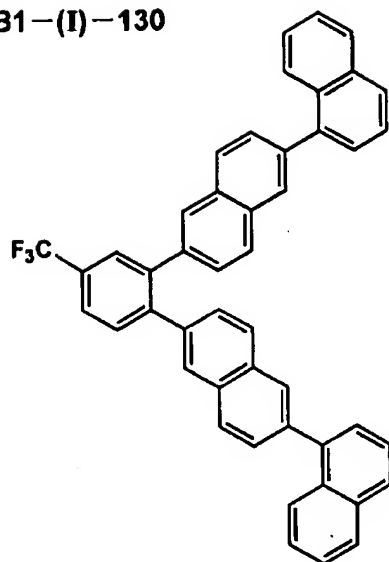
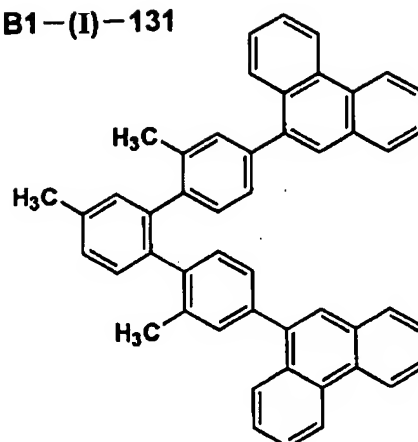
30

B1-(I)-129

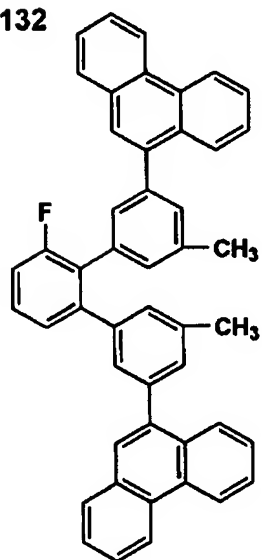


40

【 0 1 7 3 】  
【 化 2 0 0 】

**B1-(I)-130****B1-(I)-131**

10

**B1-(I)-132**

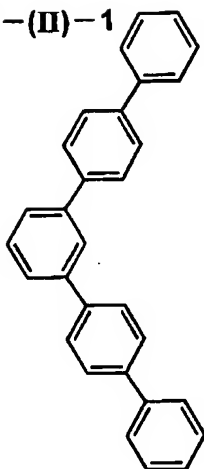
20

30

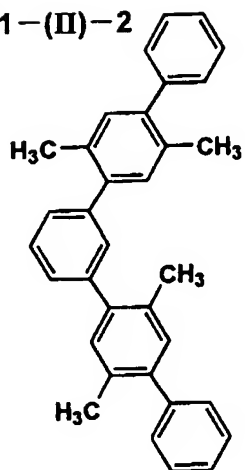
【 0 1 7 4 】

【 化 2 0 1 】

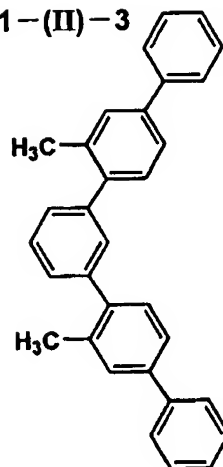
B1-(II)-1



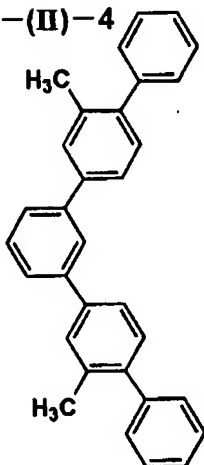
B1-(II)-2



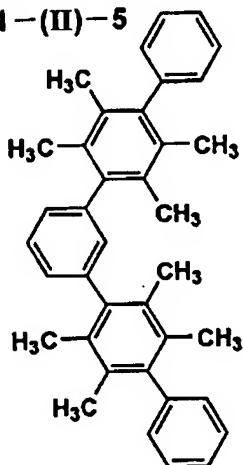
B1-(II)-3



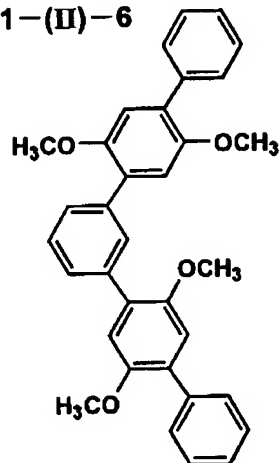
B1-(II)-4



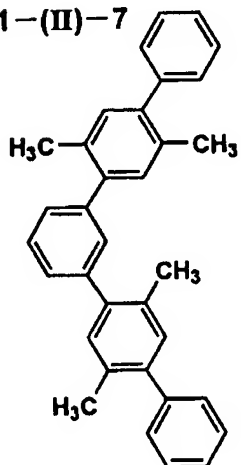
B1-(II)-5



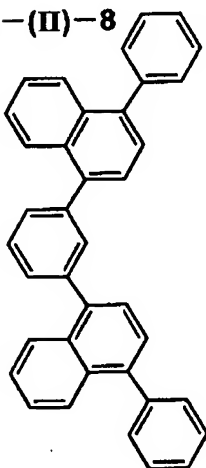
B1-(II)-6



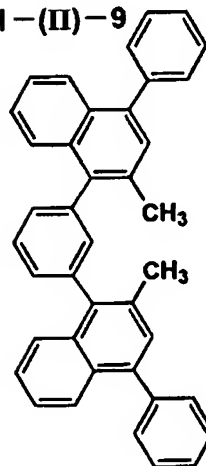
B1-(II)-7



B1-(II)-8



B1-(II)-9



10

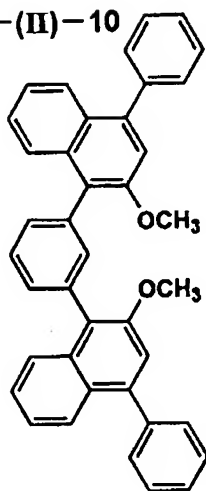
20

30

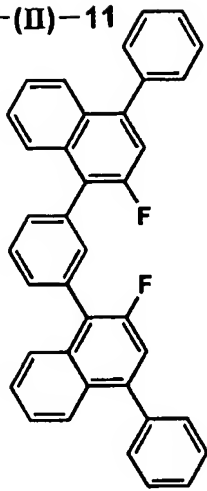
40

[ 0 1 7 5 ]  
[ 化 2 0 2 ]

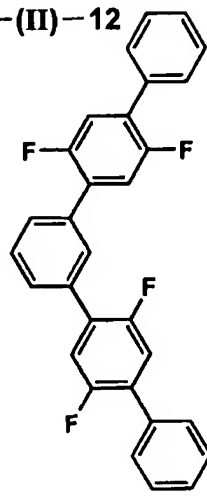
B1-(II)-10



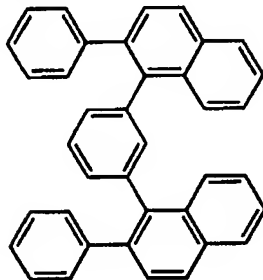
B1-(II)-11



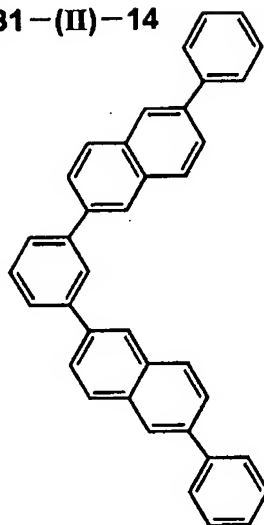
B1-(II)-12



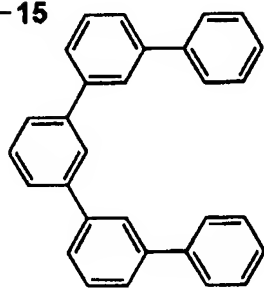
B1-(II)-13



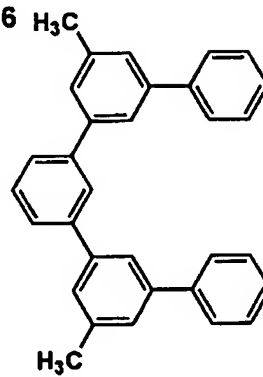
B1-(II)-14



B1-(II)-15

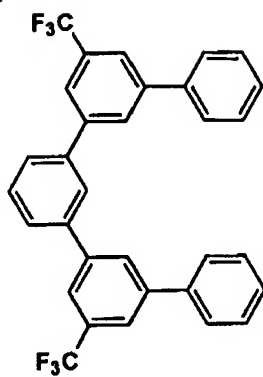


B1-(II)-16

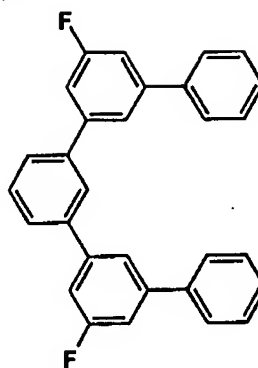


【 0 1 7 6 】  
【 化 2 0 3 】

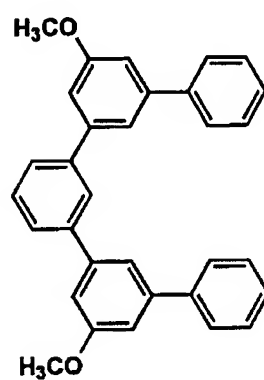
B1-(II)-17



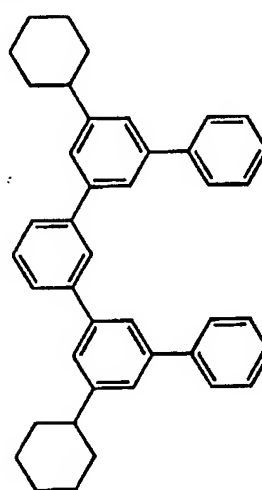
B1-(II)-18



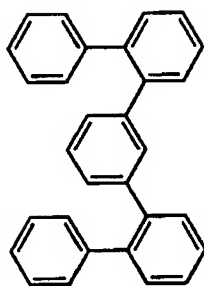
B1-(II)-19



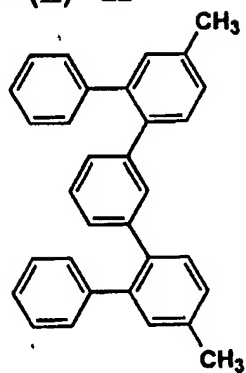
B1-(II)-20



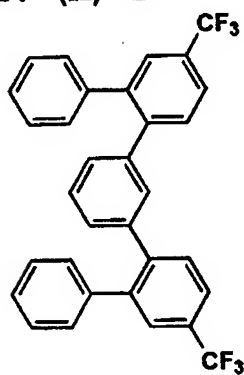
B1-(II)-21



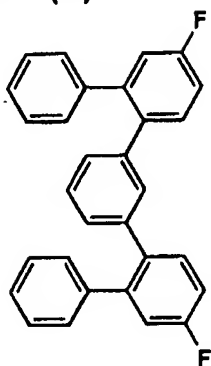
B1-(II)-22



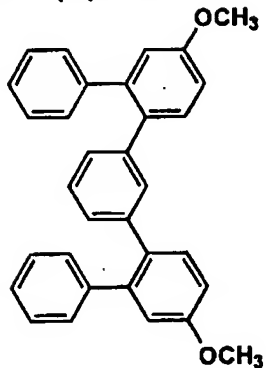
B1-(II)-23



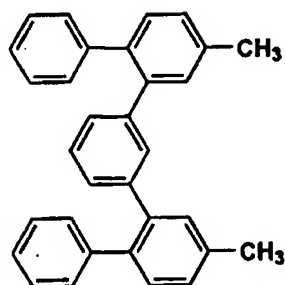
B1-(II)-24



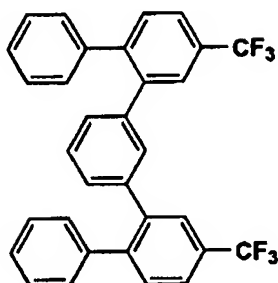
B1-(II)-25



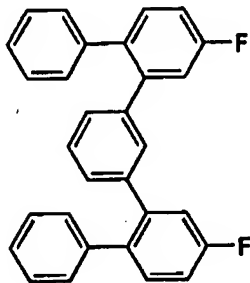
B1-(II)-26



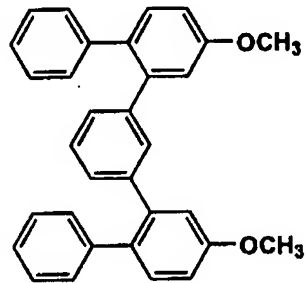
B1-(II)-27



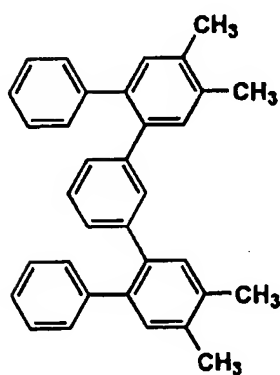
B1-(II)-28



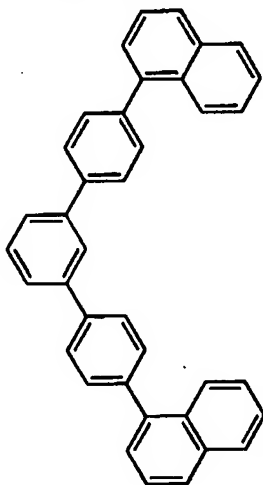
B1-(II)-29



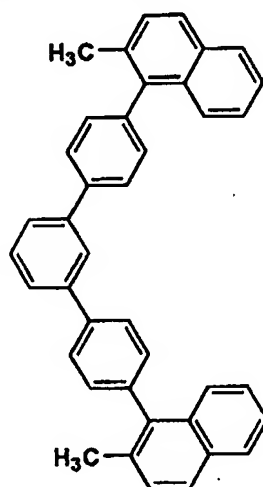
B1-(II)-30



B1-(II)-31



B1-(II)-32



10

20

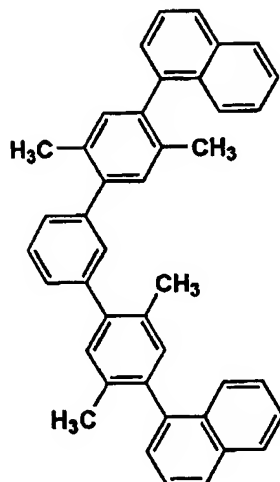
30

40

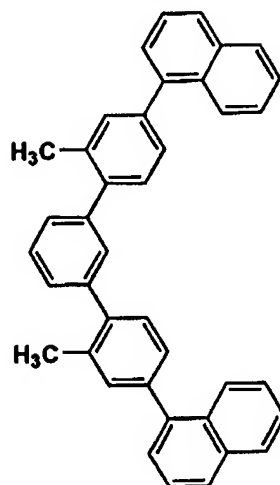
【 0 1 7 8 】

【 化 2 0 5 】

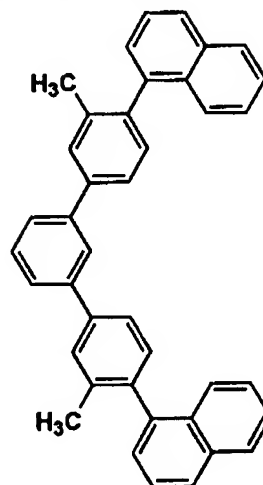
B1-(II)-33



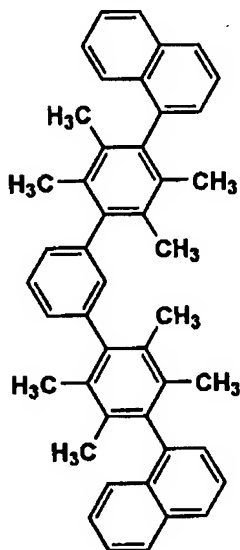
B1-(II)-34



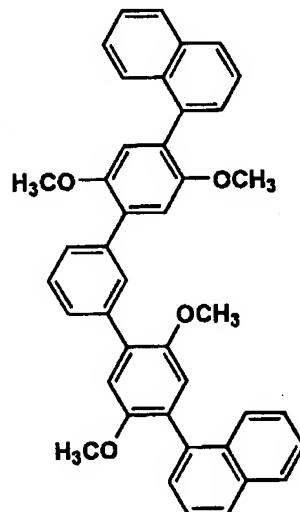
B1-(II)-35



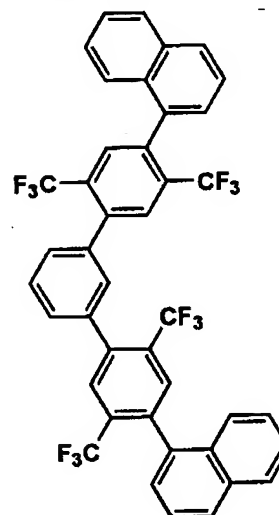
B1-(II)-36



B1-(II)-37



B1-(II)-38



10

20

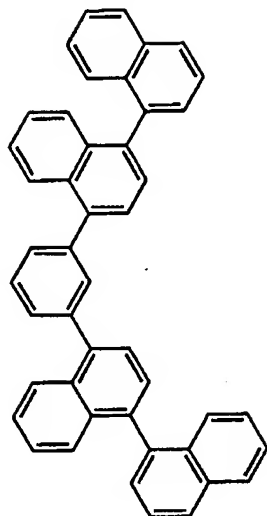
30

【 0 1 7 9 】

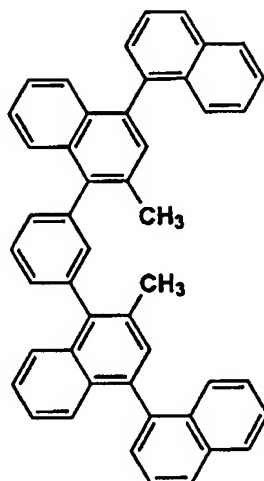
【 化 2 0 6 】



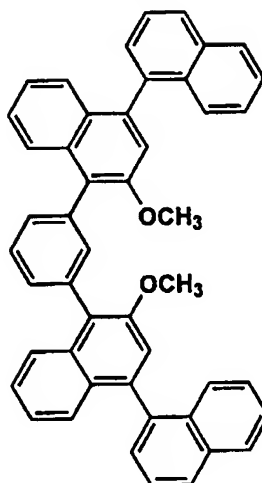
B1-(II)-39



B1-(II)-40

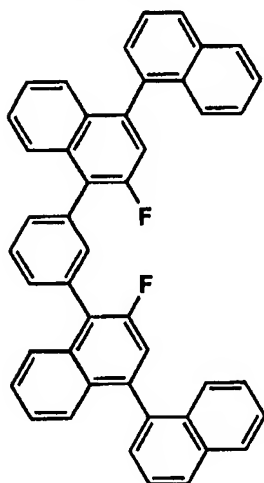


B1-(II)-41

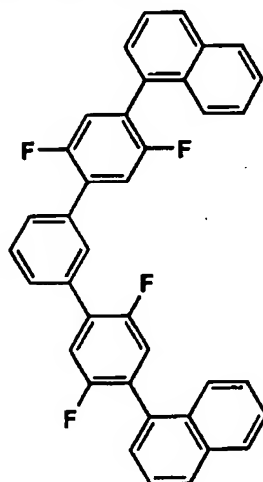


10

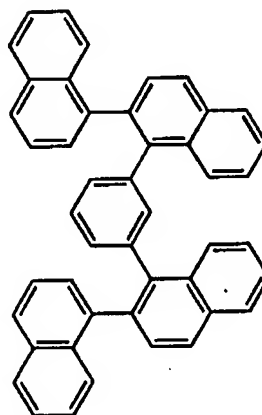
B1-(II)-42



B1-(II)-43



B1-(II)-44



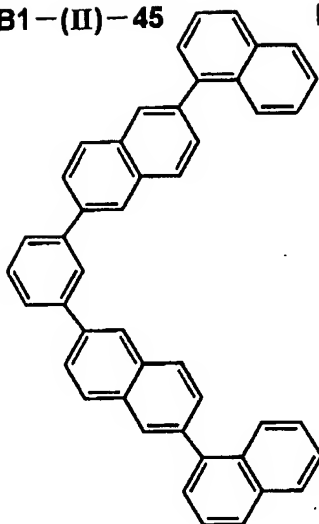
20

30

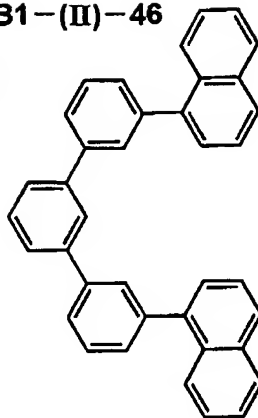
【0180】

【化207】

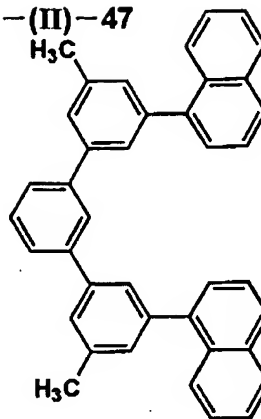
B1-(II)-45



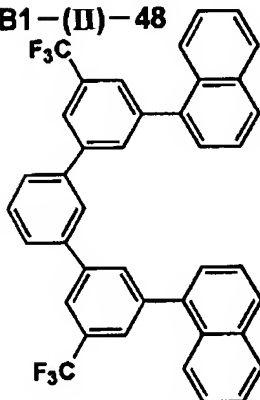
B1-(II)-46



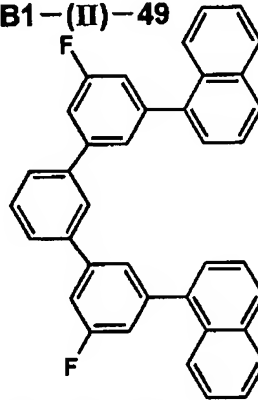
B1-(II)-47



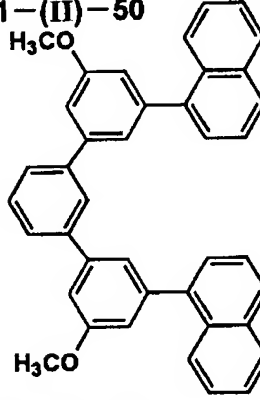
B1-(II)-48



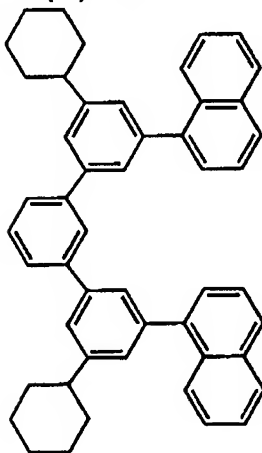
B1-(II)-49



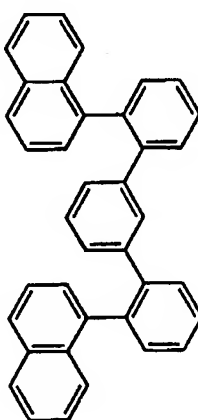
B1-(II)-50



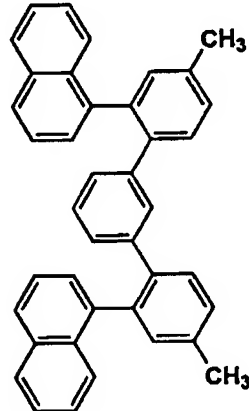
B1-(II)-51



B1-(II)-52



B1-(II)-53



10

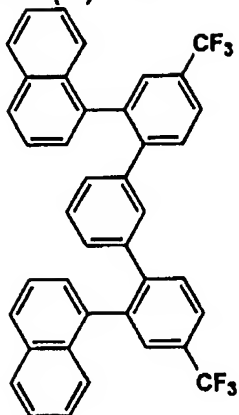
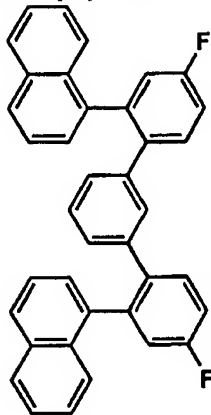
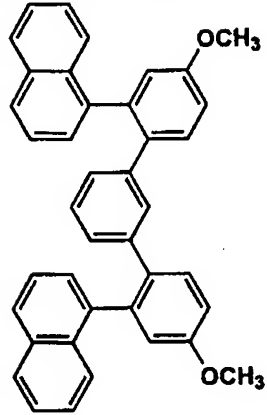
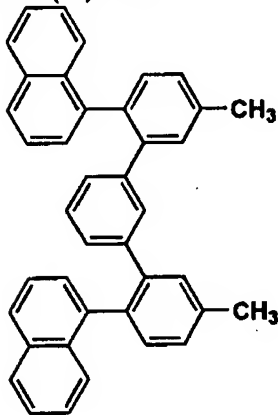
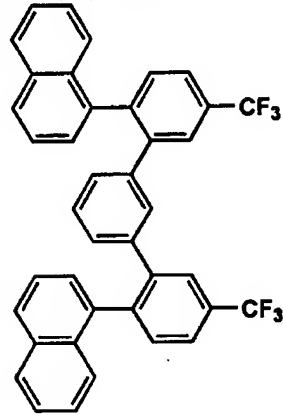
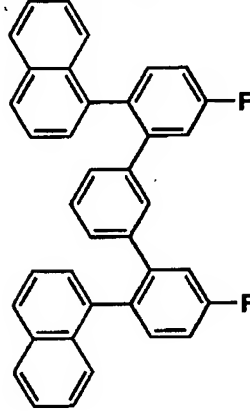
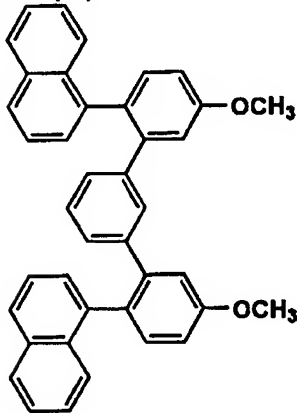
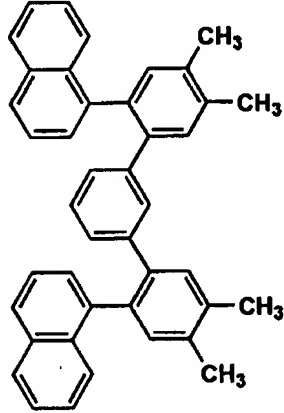
20

30

40

【 0 1 8 1 】

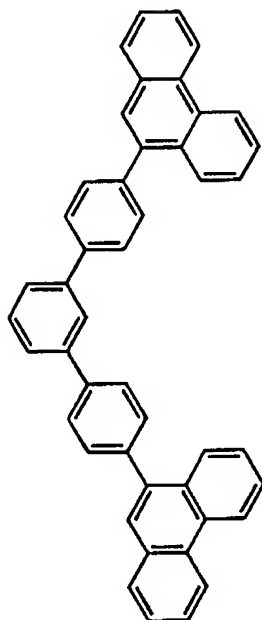
【 化 2 0 8 】

**B1-(II)-54****B1-(II)-55****B1-(II)-56****B1-(II)-57****B1-(II)-58****B1-(II)-59****B1-(II)-60****B1-(II)-61**

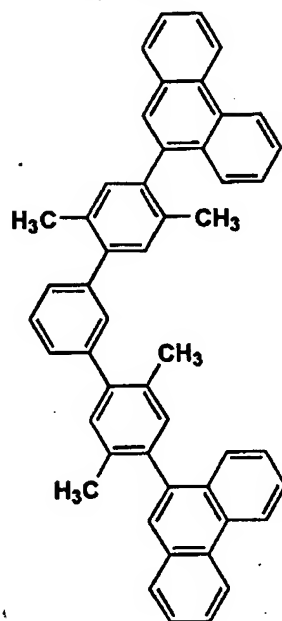
【 0 1 8 2 】

【 化 2 0 9 】

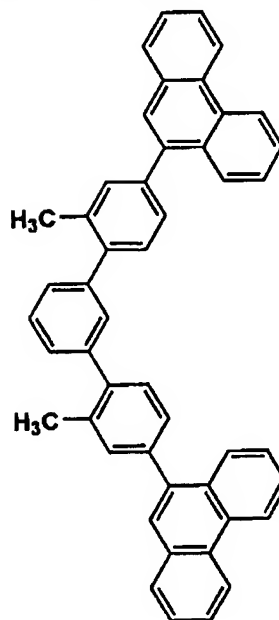
B1-(II)-62



B1-(II)-63



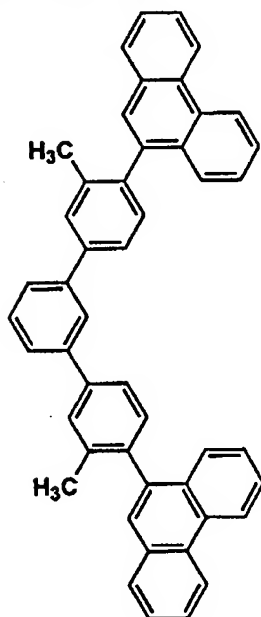
B1-(II)-64



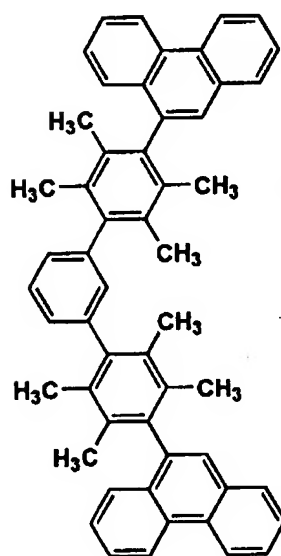
10

20

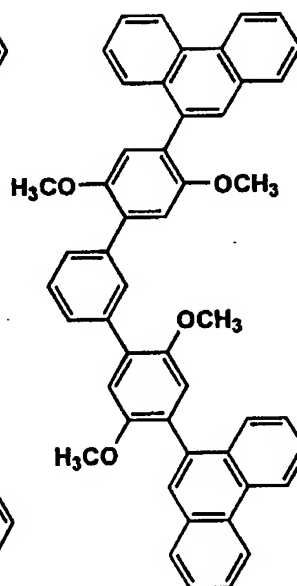
B1-(II)-65



B1-(II)-66



B1-(II)-67

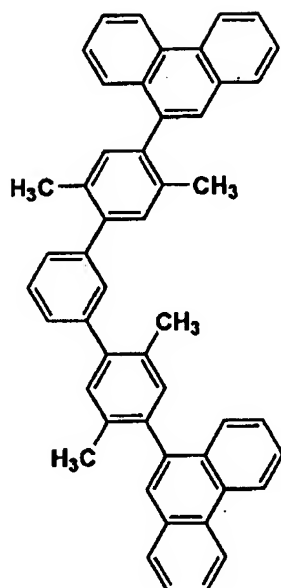
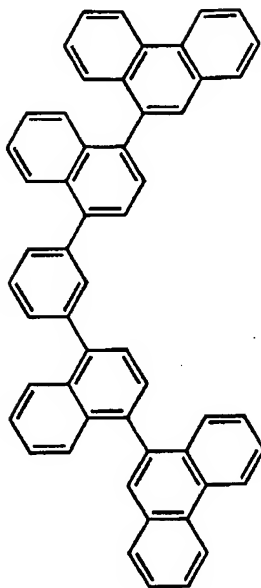
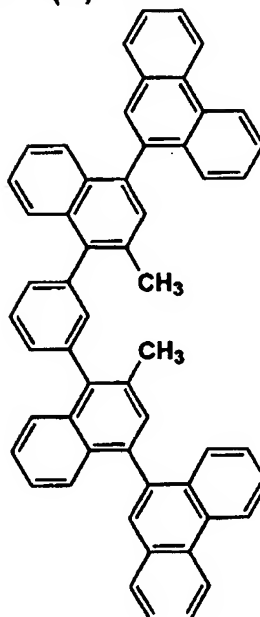
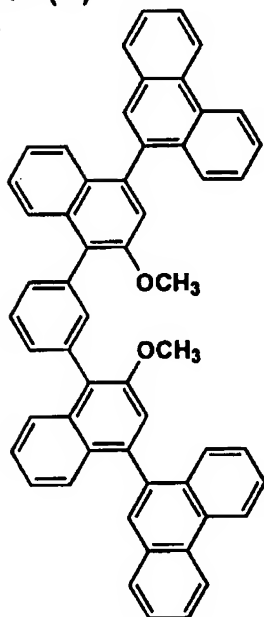
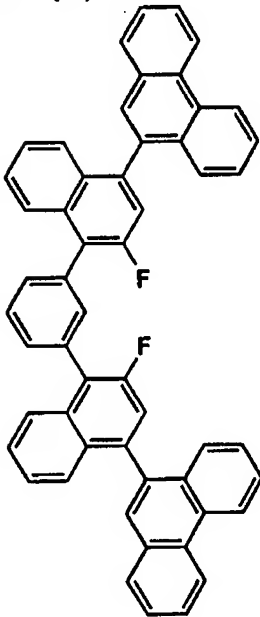
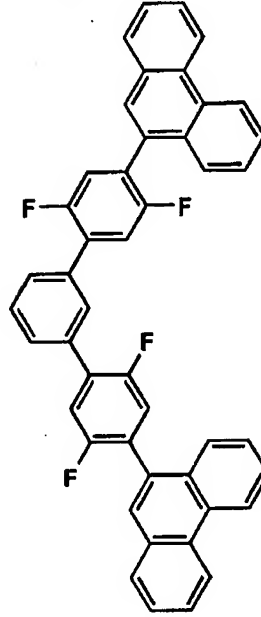


30

40

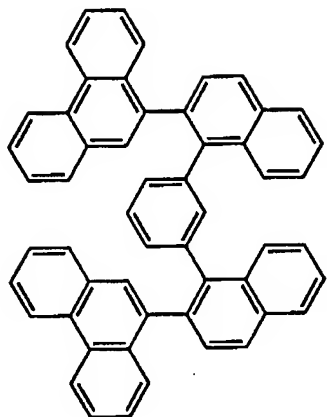
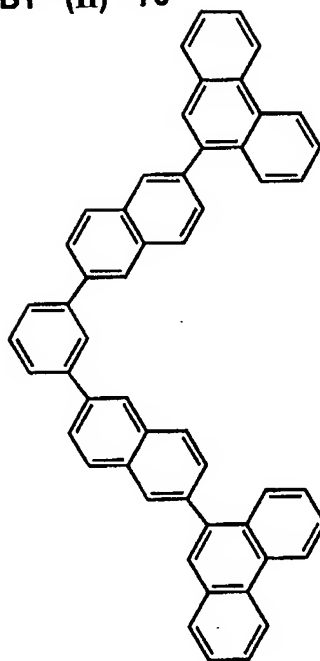
【 0 1 8 3 】

【 化 2 1 0 】

**B1-(II)-68****B1-(II)-69****B1-(II)-70****B1-(II)-71****B1-(II)-72****B1-(II)-73**

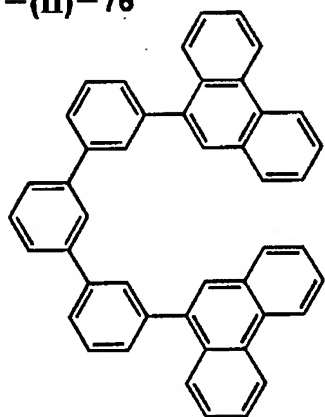
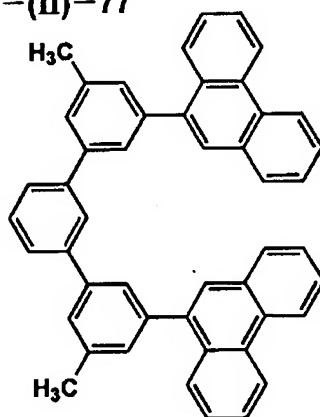
【 0 1 8 4 】

【 化 2 1 1 】

**B1-(II)-74****B1-(II)-75**

10

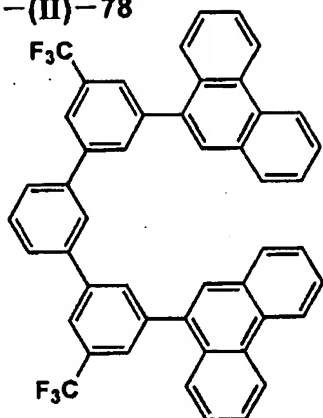
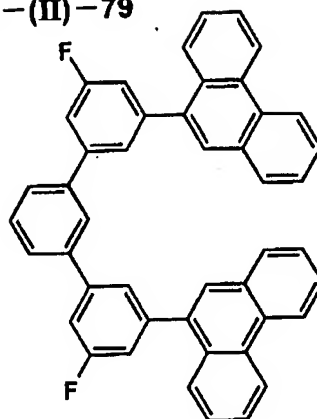
20

**B1-(II)-76****B1-(II)-77**

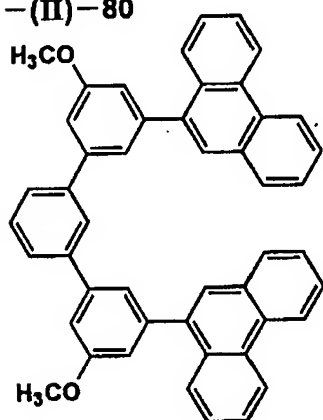
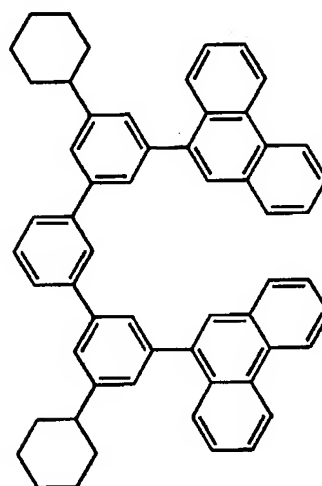
30

【 0 1 8 5 】

【 化 2 1 2 】

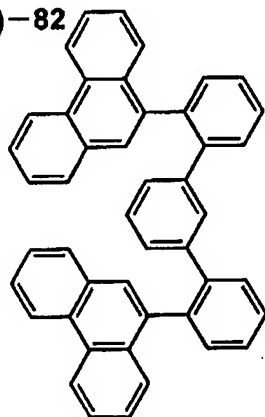
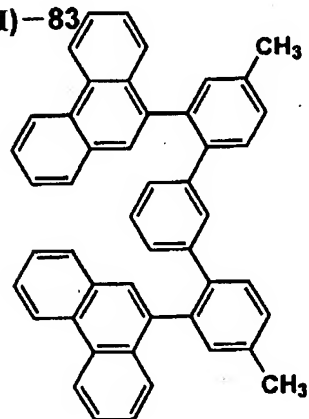
**B1-(II)-78****B1-(II)-79**

10

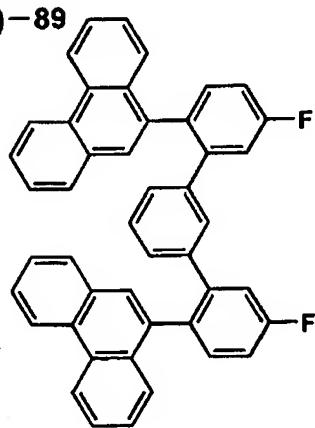
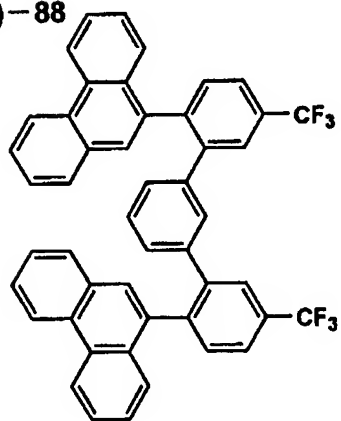
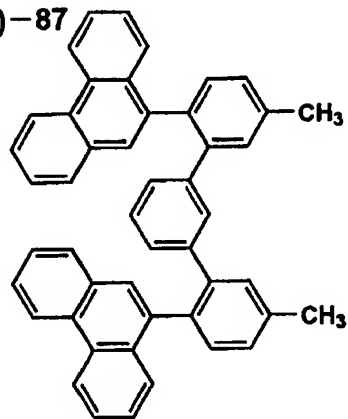
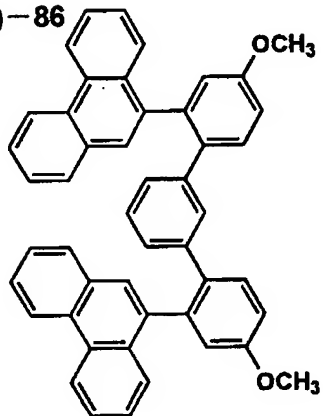
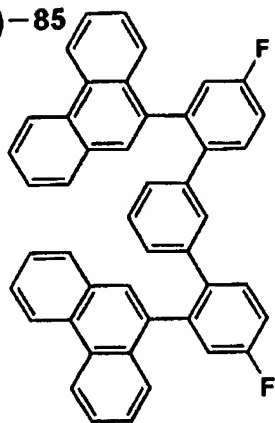
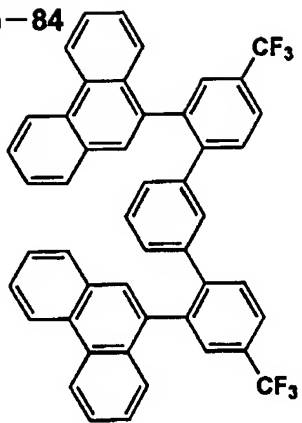
**B1-(II)-80****B1-(II)-81**

20

30

**B1-(II)-82****B1-(II)-83**

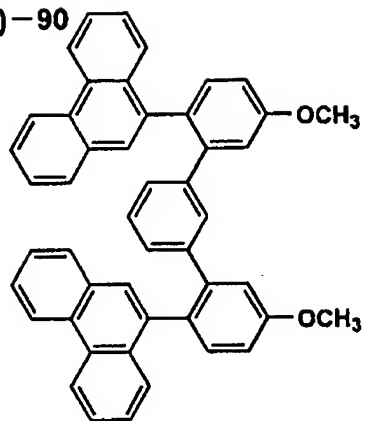
40



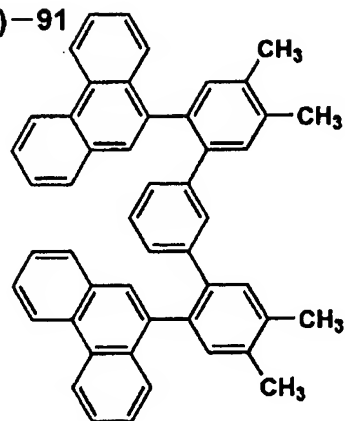
【 0 1 8 7 】  
【 化 2 1 4 】



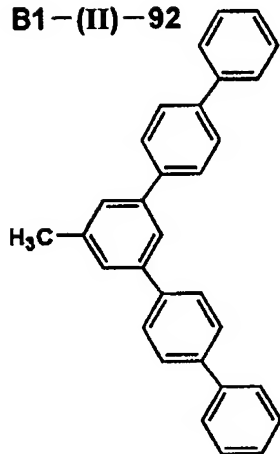
B1-(II)-90



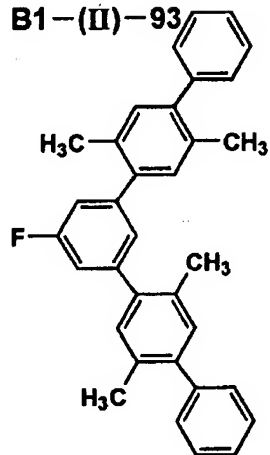
B1-(II)-91



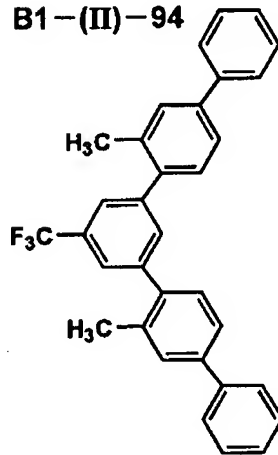
B1-(II)-92



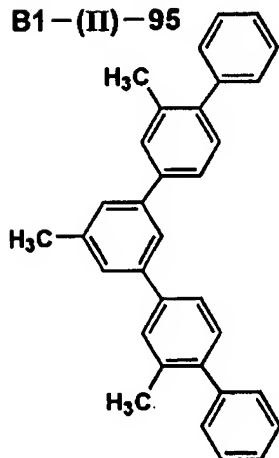
B1-(II)-93



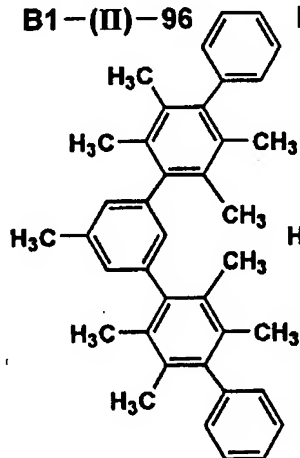
B1-(II)-94



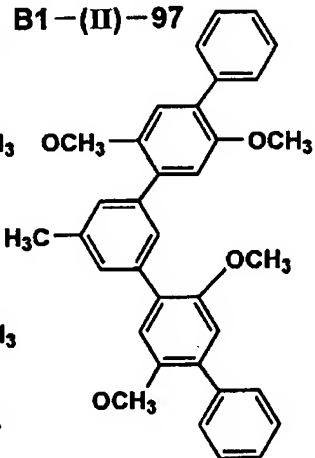
B1-(II)-95

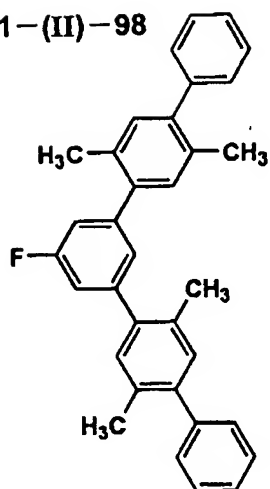
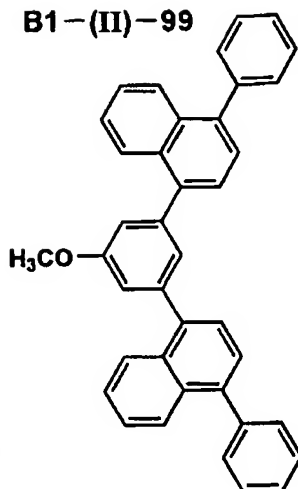
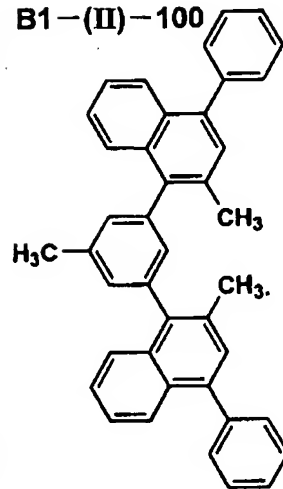
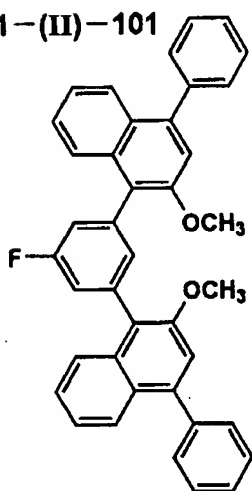
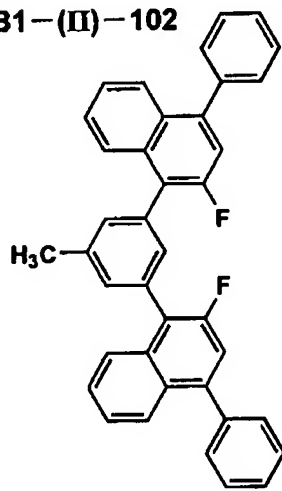
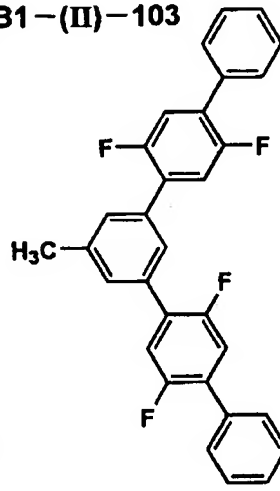
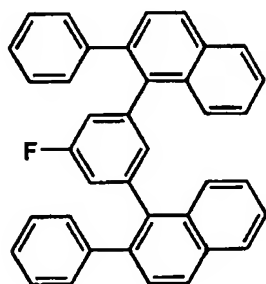


B1-(II)-96



B1-(II)-97

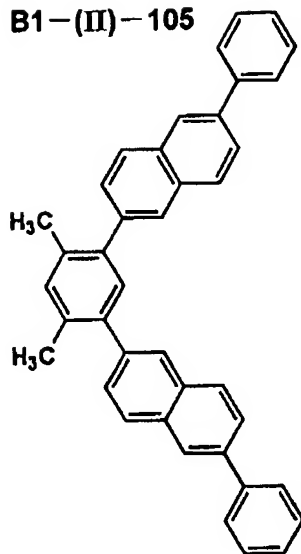


**B1-(II)-98****B1-(II)-99****B1-(II)-100****B1-(II)-101****B1-(II)-102****B1-(II)-103****B1-(II)-104**

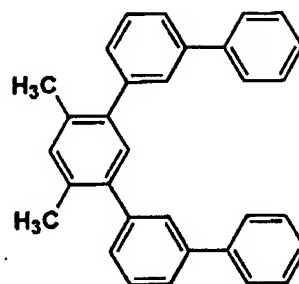
【 0 1 8 9 】

【 化 2 1 6 】

B1-(II)-105

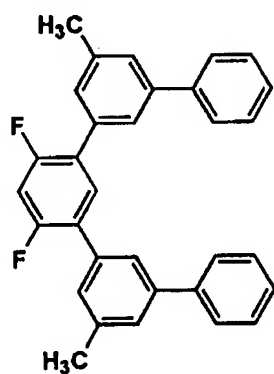


B1-(II)-106

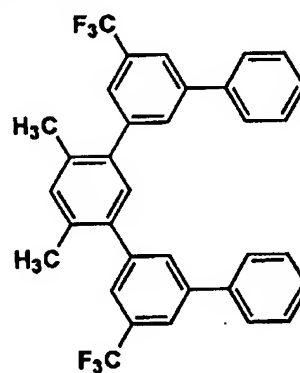


10

B1-(II)-107

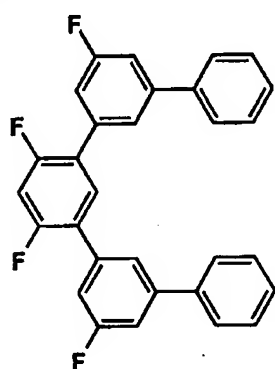


B1-(II)-108

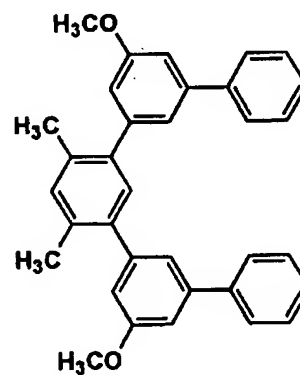


20

B1-(II)-109



B1-(II)-110



30

40

【0190】

次に、一般式 (B2-1) で表される化合物について説明する。

【0191】

前記一般式 (B2-1) において、Z で表される n 価の連結基としては、特に制限はないが、好ましくは一般式 (B2-2) ~ 一般式 (B2-7) の Z<sub>1</sub> ~ Z<sub>6</sub> で表される連結基である。

50

## 【0192】

前記一般式 (B 2-1) において、 $R_1 \sim R_8$  は各々水素原子または置換基を表すが、置換基としては、例えば、アルキル基 (例えば、メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アルケニル基 (例えば、ビニル基、プロペニル基、スチリル基等)、アルキニル基 (例えば、エチニル基等)、アリール基 (例えば、フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基等)、アルキルオキシ基 (例えば、メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基 (例えば、フェノキシ基等)、アルキルチオ基 (例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、*i*-プロピルチオ基等)、アリールチオ基 (例えば、フェニルチオ基等)、ハロゲン原子 (例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、アミノ基 (例えば、ジメチルアミノ基、メチルアミノ基、ジフェニルアミノ基等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基 (例えば、ピロール基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等) 等が挙げられる。芳香族基としては、上記アリール基およびヘテロアリール基 (例えば、ピロール基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル等) が挙げられる。隣接する置換基同士は互いに縮合し環を形成しても良い。

10

## 【0193】

前記一般式 (B 2-2) ~ (B 2-7) において、 $R_9 \sim R_{11}$  は各々水素原子または置換基を表すが、その具体例は前記  $R_1 \sim R_8$  と同義である。

20

## 【0194】

前記一般式 (B 2-1) ~ (B 2-7) において、 $A_r$  で表される 2 価のアリーレン基は、任意の芳香族化合物の任意の位置から、水素原子または置換基を 2 個取り除いた残基のことであり、該アリーレン基は炭化水素で構成されていても、ヘテロ原子を含む複素環であっても、縮合していてもよい。

## 【0195】

前記一般式 (B 2-8) において、 $A_{r1}$  で表される  $m$  価のアリーレン基は、任意の芳香族化合物の任意の位置から、水素原子または置換基を  $m$  個取り除いた残基のことであり、該アリーレン基は炭化水素で構成されていても、ヘテロ原子を含む複素環であっても、縮合していてもよい。

30

## 【0196】

一般式 (B 2-1) ~ (B 2-8) で表される本発明に係る各化合物は、固体状態において強い蛍光を持つ化合物であり、電場発光性にも優れており、発光材料として有効に使用できる。また、金属電極からの優れた電子注入性および電子輸送性が非常に優れているため、他の発光材料又は本発明に係る上記化合物を発光材料として用いた素子において、本発明に係る化合物を電子輸送材料、またはホールプロッカーとして使用した場合、優れた発光効率を示す。

## 【0197】

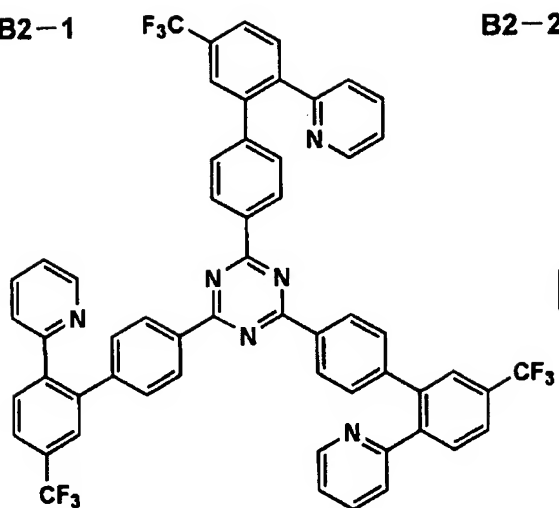
以下、一般式 (B 2-1) ~ (B 2-8) で表される化合物の具体的な例を以下に列举するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

40

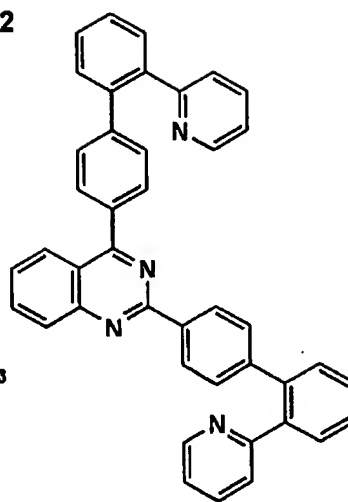
## 【0198】

## 【化 217】

B2-1

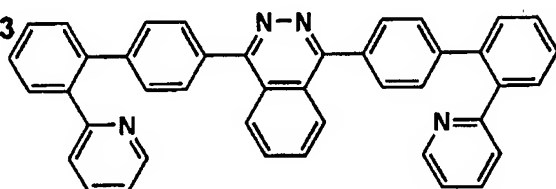


B2-2



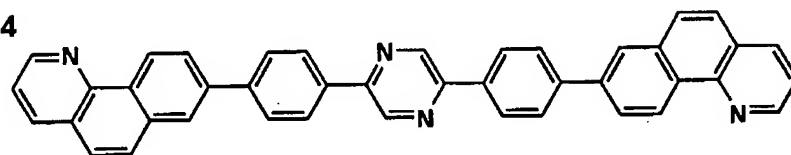
10

B2-3

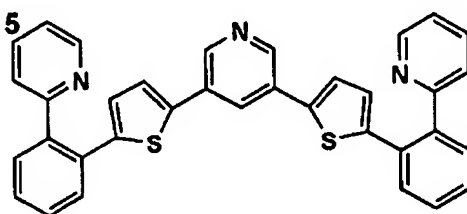


20

B2-4

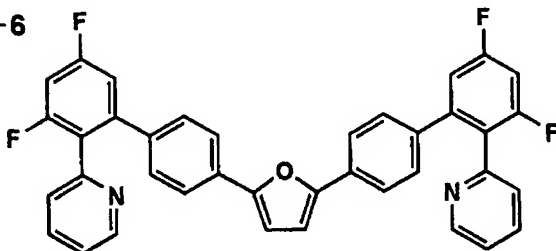


B2-5



30

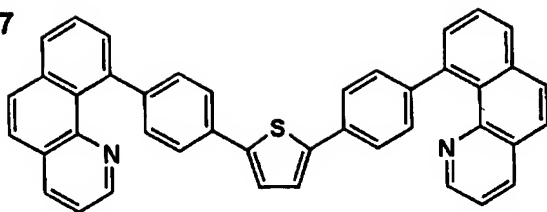
B2-6



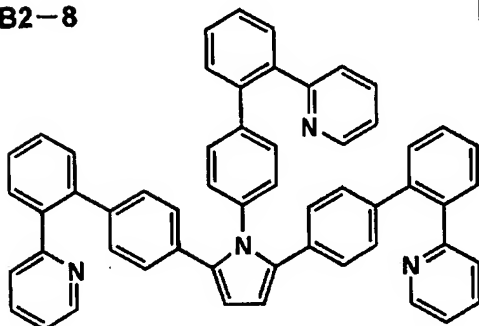
40

[ 0 1 9 9 ]  
[ 化 2 1 8 ]

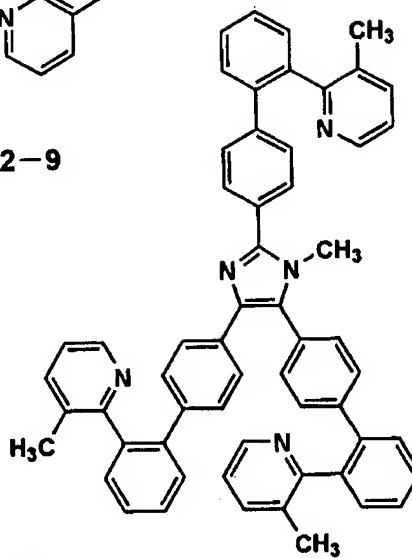
B2-7



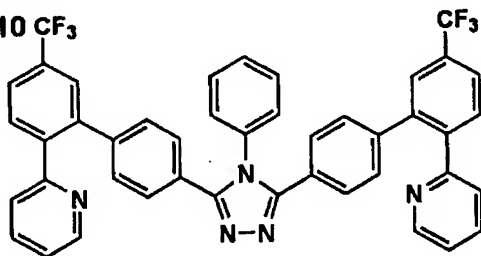
B2-8



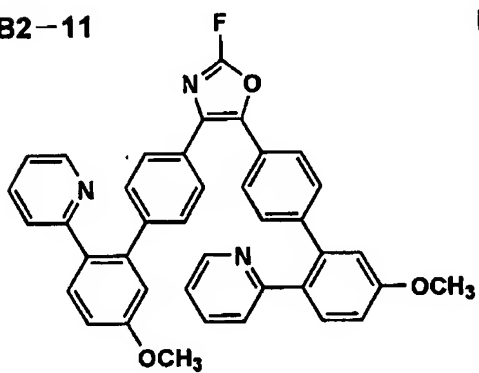
B2-9



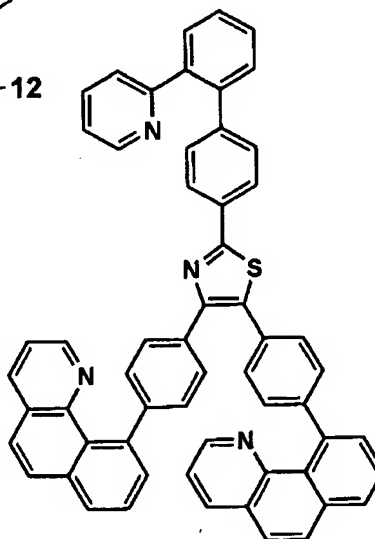
B2-10



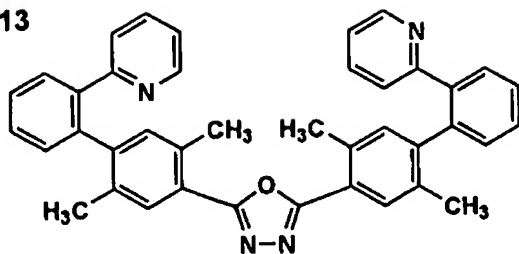
B2-11



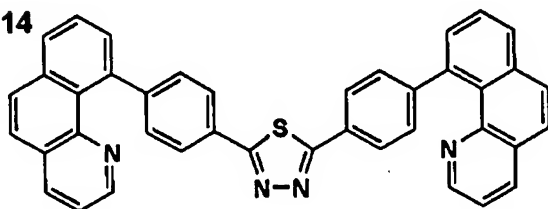
B2-12



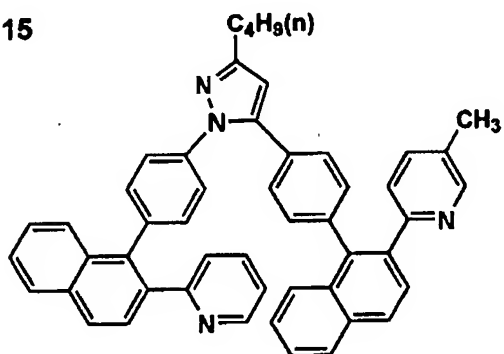
B2-13



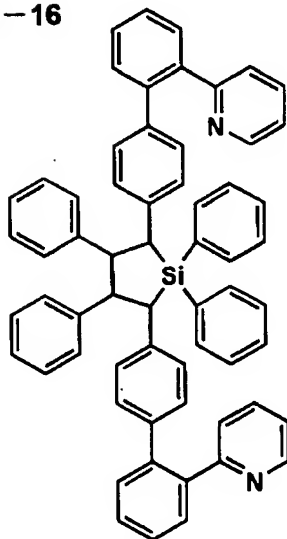
B2-14



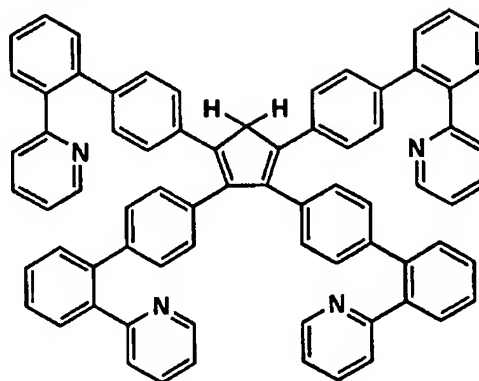
B2-15



B2-16

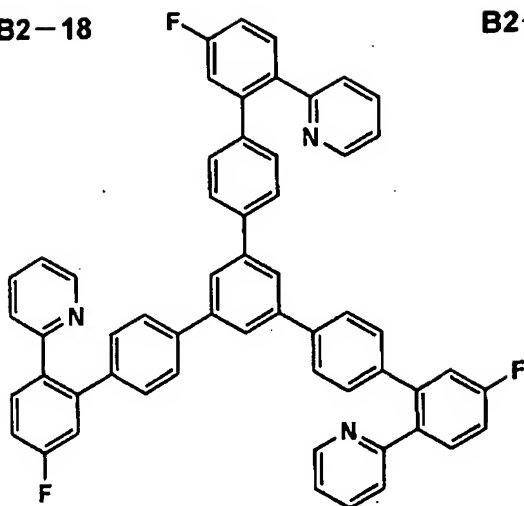


B2-17

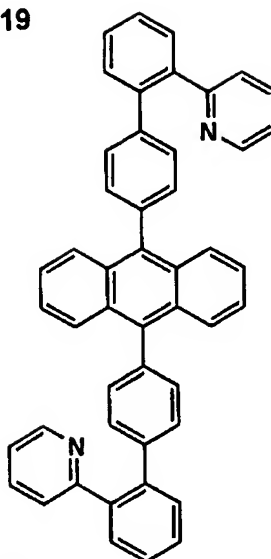


【 0 2 0 1 】  
【 化 2 2 0 】

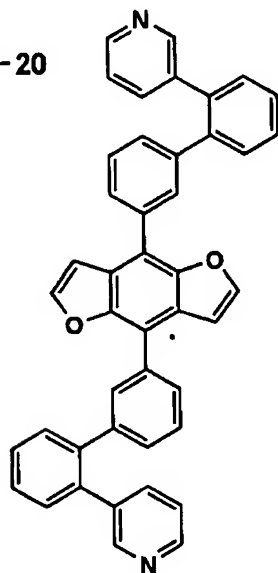
B2-18



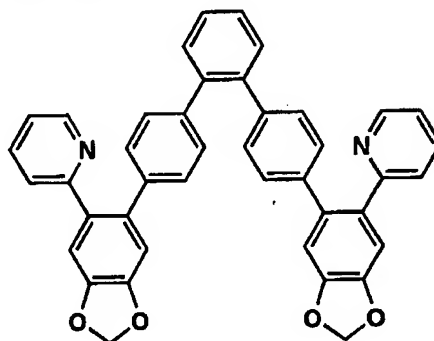
B2-19



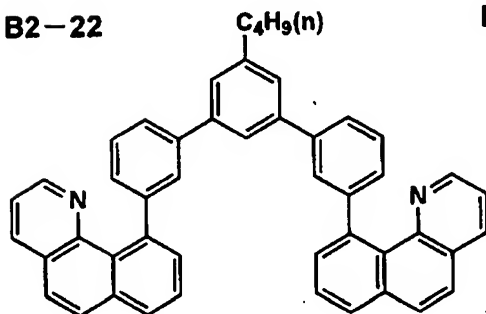
B2-20



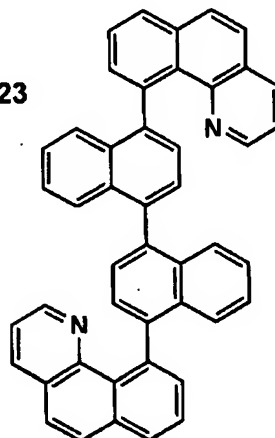
B2-21



B2-22



B2-23



[ 0 2 0 2 ]  
[ 化 2 2 1 ]

10

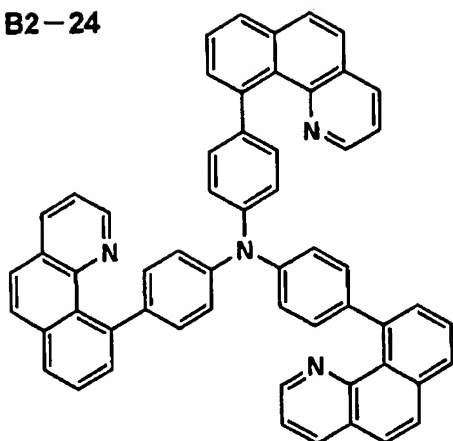
20

30

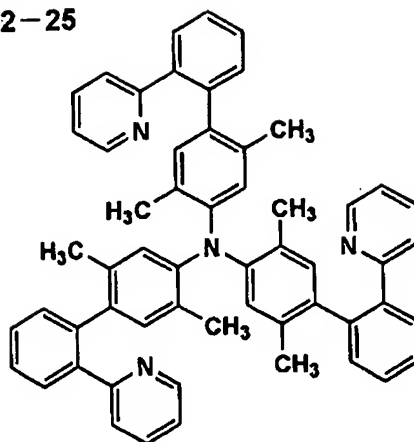
40



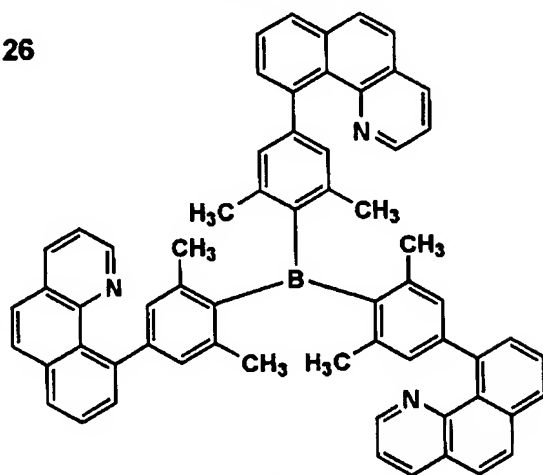
B2-24



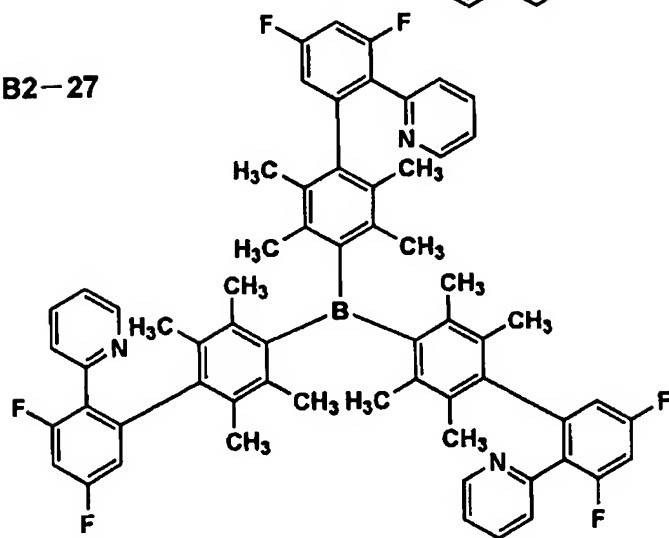
B2-25



B2-26

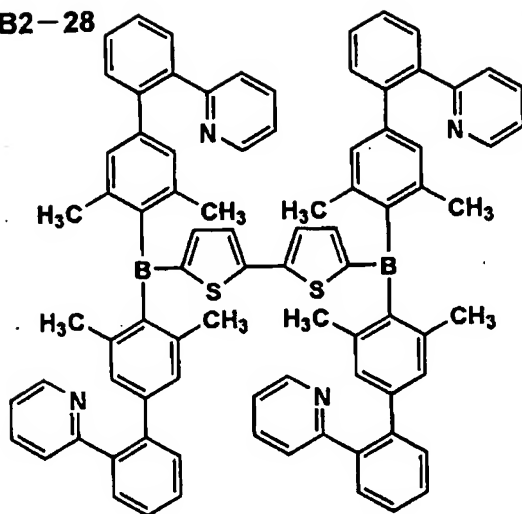


B2-27

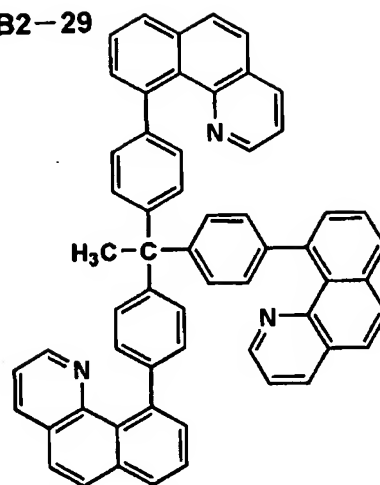


[ 0 2 0 3 ]  
[ 化 2 2 2 ]

B2-28

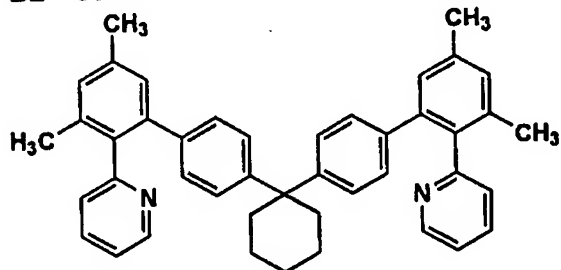


B2-29

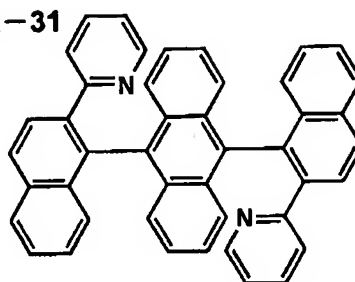


10

B2-30

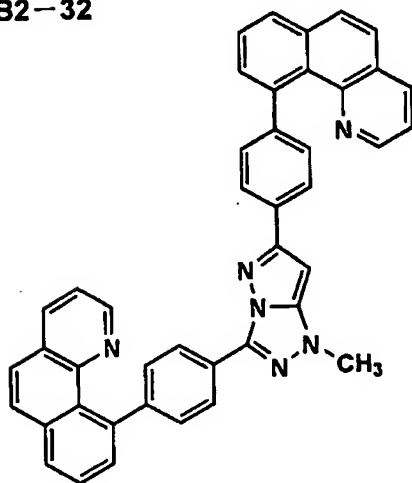


B2-31

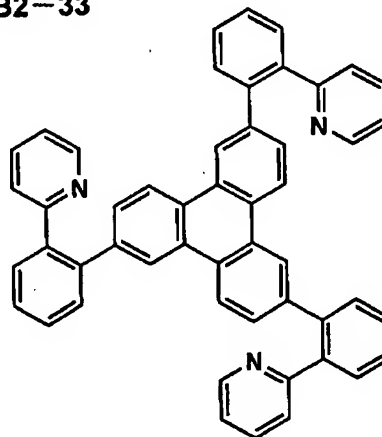


20

B2-32



B2-33



30

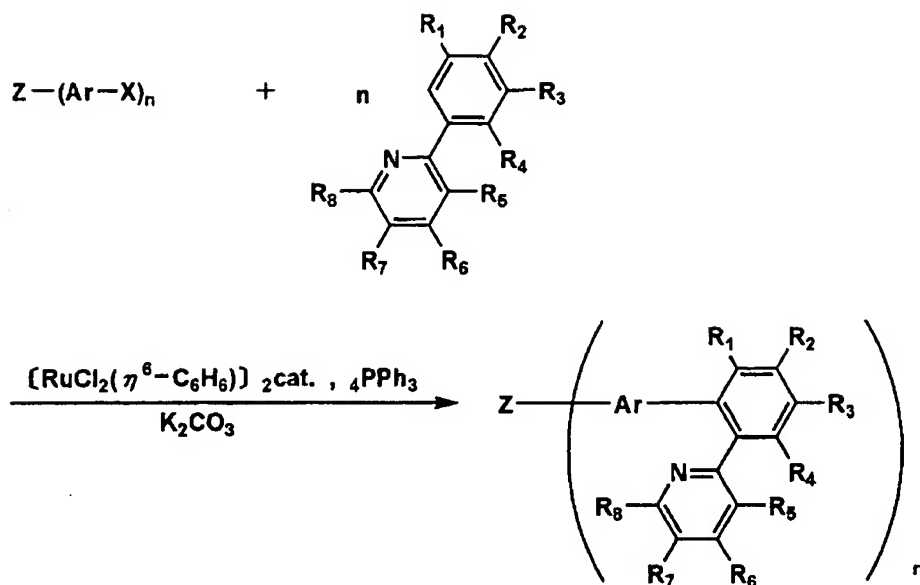
40

【0204】

本発明に係る上記化合物は、既知の合成方法に従って容易に合成することができるが、以下に示す合成ルートにより、より簡便に合成することができる。

【0205】

【化223】



10

20

## 【0206】

上記反応は、オーガニックレター誌、Vol. 3, No. 16, p 2579~2581 (2001年) に詳細に説明されている。

## 【0207】

次いで、一般式 (B3-1) で表される化合物について説明する。

## 【0208】

一般式 (B3-1) において、 $Y_1$ 、 $Y_2$  は、各々炭素原子と共に4員環~8員環を形成可能な2価基であり、4員環~8員環の骨格形成に用いられる原子数は、各々独立に0~6の範囲である。但し、前記原子数が0の場合は、 $Y_1$  または  $Y_2$  で表される2価基は結合手（単に、結合ともいう、ここで、結合手とは単結合または二重結合を表す。）を表す。

30

## 【0209】

## 《2価基》

$Y_1$ 、 $Y_2$  で各々表される2価基としては、2価の炭化水素基が好ましく、例えば、アルキレン基（例えば、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、プロピレン基、エチルエチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基等）、アルケニレン基（例えば、ビニレン基、プロペニレン基等）、アルキニレン基（例えば、エチニレン基、3-ペンチニレン基等）が挙げられる。

## 【0210】

ここで、前記のアルキレン基、アルケニレン基、アルキニレン基の主鎖を構成する炭素原子は、部分的に酸素原子や硫黄原子に置き換わっていてもよい。

40

## 【0211】

一般式 (B3-1) において、炭素原子と共に各々5員環~8員環を形成する、 $Z_1$ 、 $Z_2$  で各々表される原子群とは、前記5員環~前記8員環の骨格形成に用いられる原子数の総和が、各々4~7のものであり、かつ、前記主鎖は、各々少なくとも1つの芳香族環と縮合環を形成していることが特徴である。

## 【0212】

## 《5員環~8員環》

一般式 (B3-1) において、 $Z_1$ 、 $Z_2$  が各々炭素原子と共に形成する5員環~8員環

50

としては、シクロペンタジエン環、1,4-ジヒドロピリジン環、 $\gamma$ -チオピラン環、 $\gamma$ -ピラン環、シクロヘキサジエン環、シクロヘプタジエン環、シクロオクタジエン環等が挙げられるが、中でも好ましく用いられるのは、シクロペンタジエン環、1,4-ジヒドロピリジン環、 $\gamma$ -チオピラン環、 $\gamma$ -ピラン環等である。

#### 【0213】

##### 《縮合環形成している芳香族環》

また、一般式(B3-1)において、 $Z_1$ 、 $Z_2$ が各々炭素原子と共に形成する、上記の5員環～8員環と縮合環を形成する芳香族環としては、芳香族炭素環(例えば、ベンゼン環、ナフタレン環、ビフェニル環、p-テルフェニル環、ジフェニルメタン環、トリフェニルメタン環、ビベンジル環、スチルベン環、インデン環、テトラリン環、アントラセン環、フェナントレン環等)や芳香族複素環基例えば、フラン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、1,2,3-オキサジアゾール環、1,2,3-トリアゾール環、1,2,4-トリアゾール環、1,3,4-チアジアゾール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、s-トリアジン環、ベンゾフラン環、インドール環、ベンゾチオフェン環、ベンズイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、プリン環、キノリン環及びイソキノリン環等々が挙げられる。

#### 【0214】

上記の中でも好ましく用いられる芳香族環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、スチルベン環等が挙げられる。

#### 【0215】

また、一般式(B3-1)において、 $Z_1$ 、 $Z_2$ が各々炭素原子と共に形成する、上記の5員環～8員環と縮合環を形成する芳香族環は、同一でも異なってもよい。

#### 【0216】

##### 《芳香族環上の置換基》

また、上記の芳香族環は、更に置換基を有してよく、前記置換基としては、例えば、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、i s o-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t e r t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アルケニル基(例えば、ビニル基、プロペニル基、スチリル基等)、アルキニル基(例えば、エチニル基等)、アリール基(例えば、フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等)、アルコキシル基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、i s o-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、i s o-プロピルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、アミノ基(例えば、ジメチルアミノ基、メチルアミノ基、ジフェニルアミノ基等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基(例えば、ピロリル基、ピロリジニル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)等が挙げられる。芳香族基としては上記アリール基およびヘテロアリール基(ピロール基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンゾイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル等)が挙げられ、それぞれの置換基は更に、任意の置換基で置換されていてもよい。

#### 【0217】

一般式(B3-2)で表される化合物について説明する。

#### 【0218】

一般式(B3-2)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ 、 $Y_3$ 、 $Y_4$ で各々表される基は、前記一般式(B3-1)において、 $Y_1$ 、 $Y_2$ で各々表される基と同義である。更に、一般式(B3-2)において、 $Z_1$ 、 $Z_2$ で各々表される基は、前記一般式(B3-1)において、 $Z_1$ 、 $Z_2$ で各々表される基と同義である。

#### 【0219】

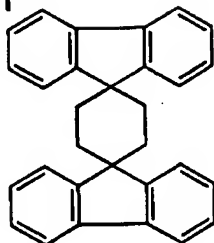
以下に、前記一般式(B3-1)または(B3-2)で表される化合物の具体例を示すが

、本発明はこれらに限定されない。

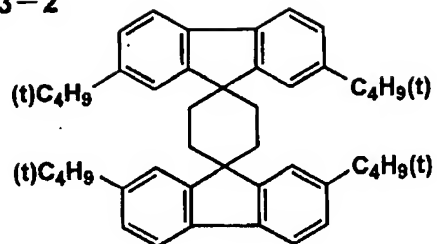
【0220】

【化224】

B3-1

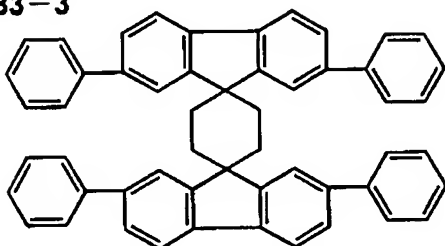


B3-2

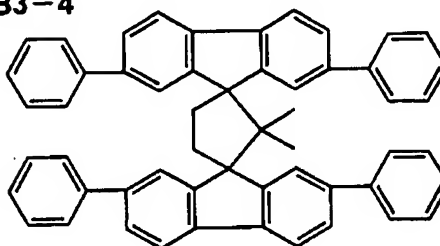


10

B3-3

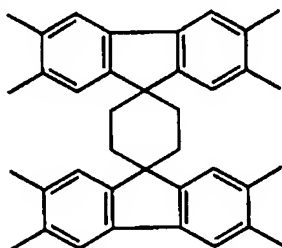


B3-4

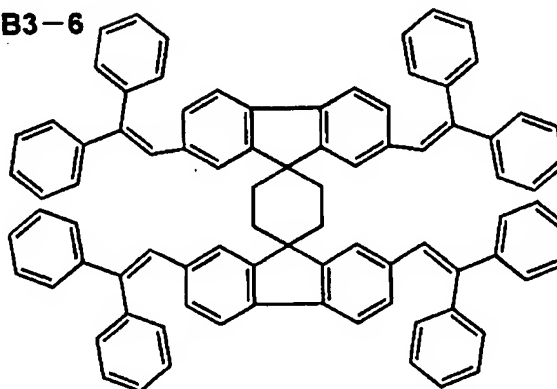


20

B3-5

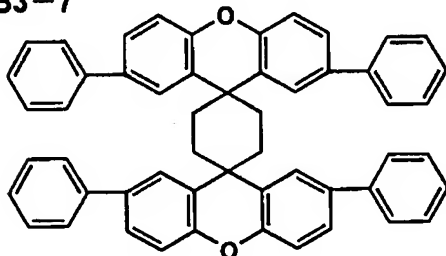


B3-6

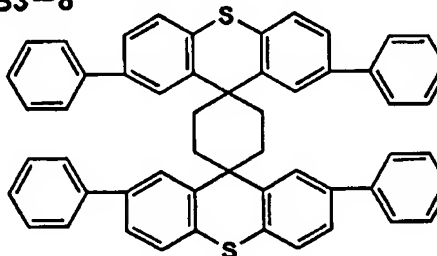


30

B3-7



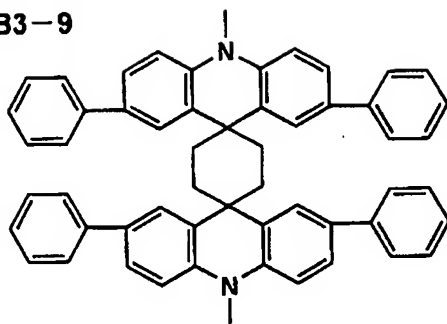
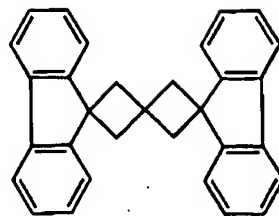
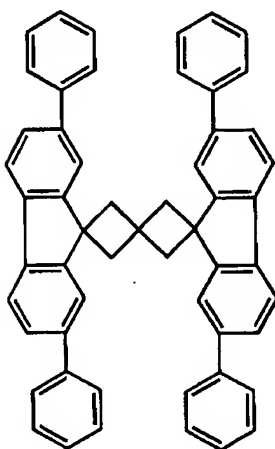
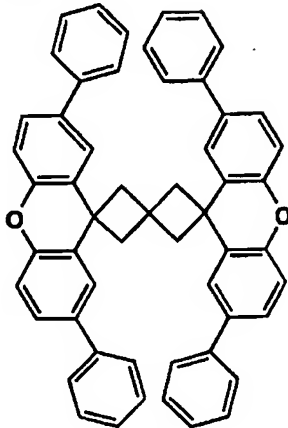
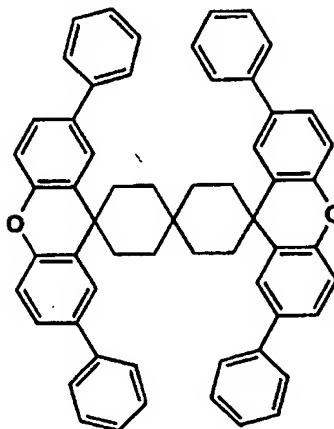
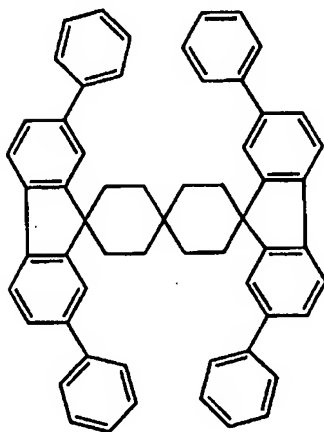
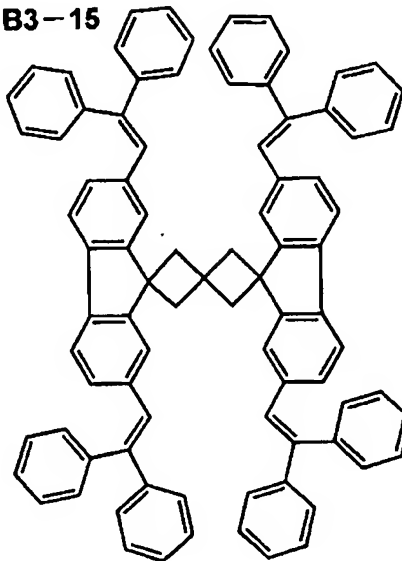
B3-8



40

【0221】

【化225】

**B3-9****B3-10****B3-11****B3-12****B3-13****B3-14****B3-15**

## 【0222】

前記一般式 (B3-1) または (B3-2) で表される化合物は、J. Chem. Soc., Chem. Commun. 309-310 (1998)、Tetrahedron Lett. 3855-3856 (2001) 等に記載の方法を参照して合成することが出来る。

## 【0223】

10

20

30

40

50

本発明に係わる上記の化合物は、好ましくは、後述する発光層や電子輸送層に含有されることである。

【0224】

前記一般式(B3-1)または(B3-2)で表される化合物は、固体状態において強い蛍光を示す化合物であり、電場発光性にも優れており、有機EL素子の発光材料として有効に使用できる。また、金属電極からの優れた電子注入性および電子輸送性に非常に優れているため、前記一般式(B3-1)または(B3-2)で表される化合物を電子輸送材料(またはホールブロッカー)として使用した場合、有機EL素子は、優れた発光効率を示すことをも本発明者等は併せて見いだした。

【0225】

一般式(B4-1)で表される化合物について説明する。

【0226】

R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>で表される置換基としては、アルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アルケニル基(ビニル基、プロペニル基、スチリル基等)、アルキニル基(エチニル基等)、アリール基(フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等)、アルキルオキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(フェノキシ基等)、アルキルチオ基(メチルチオ基、エチルチオ基、i-プロピルチオ基等)、アリールチオ基(フェニルチオ基等)、ハロゲン原子(フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、アミノ基(ジメチルアミノ基、メチルアミノ基、ジフェニルアミノ基等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基(ピロール基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)等が挙げられる。芳香族基としては上記アリール基及びヘテロアリール基(ピロール基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル等)が挙げられ、それぞれの置換基は更に任意の置換基で置換されていてもよい。また、隣接する置換基同士は互いに縮合し環を形成してもよい。

【0227】

R<sub>3</sub>~R<sub>6</sub>は水素原子または置換基を表すが、その具体例は前記R<sub>1</sub>と同義である。R<sub>3</sub>またはR<sub>4</sub>の少なくとも一方は置換基を表すが、特に好ましい置換基はアルキル基である。

【0228】

A<sub>r</sub>で表される2価のアリーレン基は、任意の芳香族化合物の任意の位置から、水素原子または置換基を2個取り除いた残基のことであり、アリーレン基は炭化水素で構成されていても、ヘテロ原子を含む複素環であっても、縮合していてもよい。

【0229】

A<sub>r1</sub>及びA<sub>r2</sub>で表されるアリール基としては、芳香族炭化水素環基であっても芳香族複素環基であってもよく、さらに縮合環を形成していてもよい。具体例としては、フェニル基、1-ナフチル基、9-アントリル基、9-フェナンスリル基、2-ピリジル基、4-キノリル基、2-チエニル基等が挙げられる。なお、A<sub>r1</sub>またはA<sub>r2</sub>のいずれか一方が、

【0230】

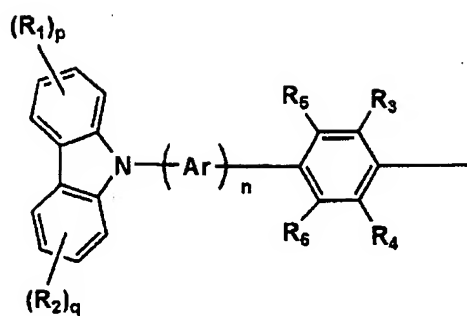
【化226】

10

20

30

40



10

【0231】

で表されることが好ましい。

【0232】

本発明の化合物は、固体状態において強い蛍光を持つ化合物であり、電場発光性にも優れており、発光材料として有効に使用できる。また、金属電極からの優れた電子注入性及び電子輸送性に非常に優れているため、他の発光材料または本発明の化合物を発光材料として用いた素子において、本発明の化合物を電子輸送材料（またはホールブロッカー）として使用した場合優れた発光効率を示す。

20

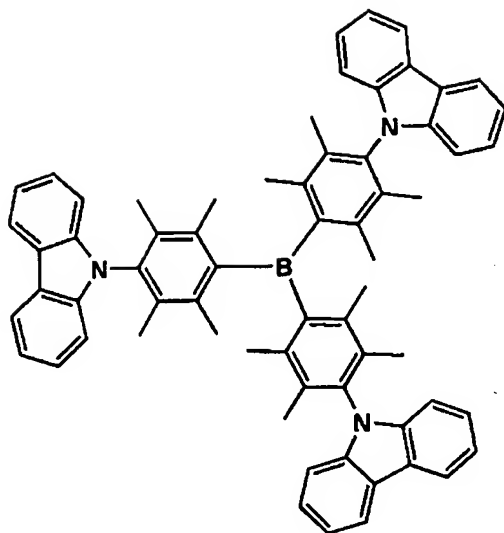
【0233】

以下に具体的な化合物の例を挙げるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

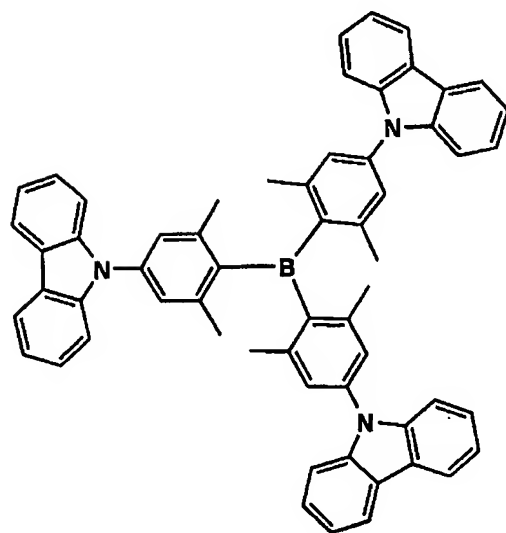
【0234】

【化227】



**B4-1**

10

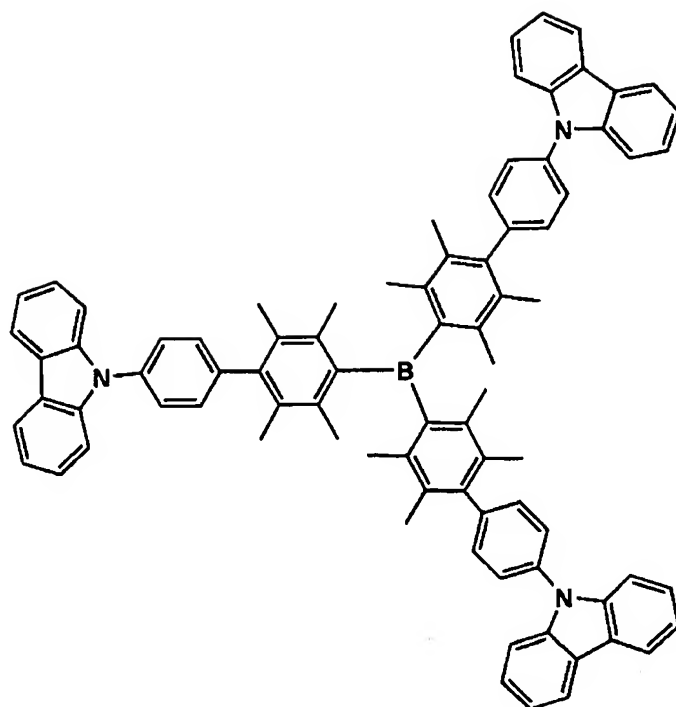
**B4-2**

20

30

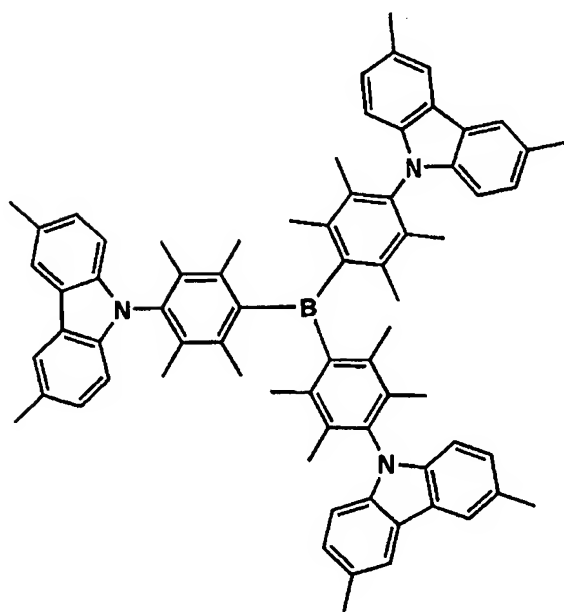
【 0 2 3 5 】

【 化 2 2 8 】

**B4-3**

10

20

**B4-4**

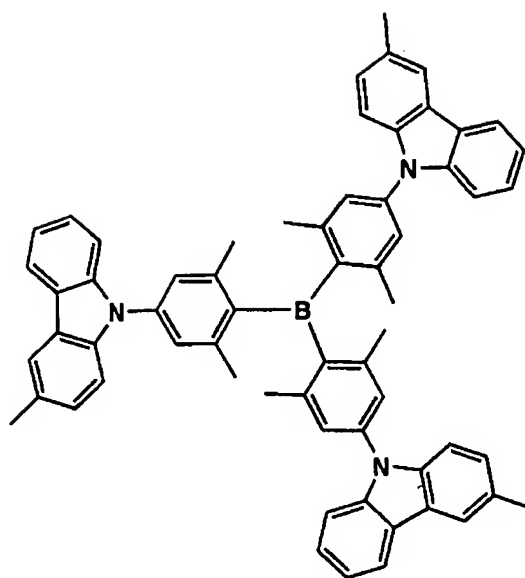
30

40

【 0 2 3 6 】

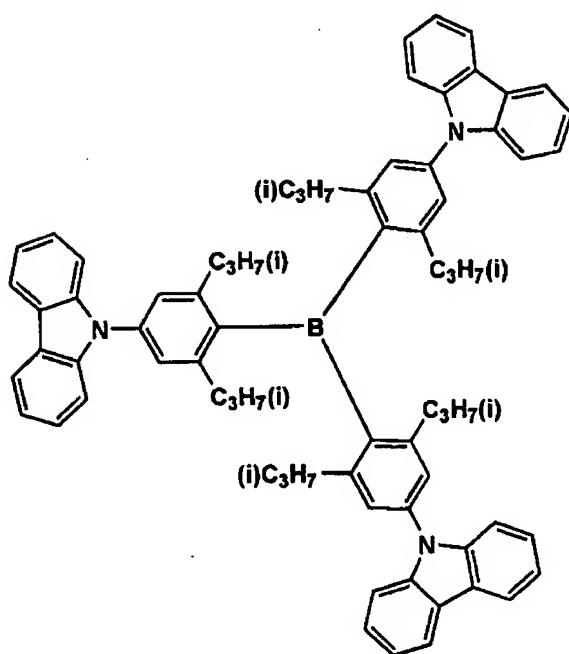
【 化 2 2 9 】

B4-5



10

B4-6

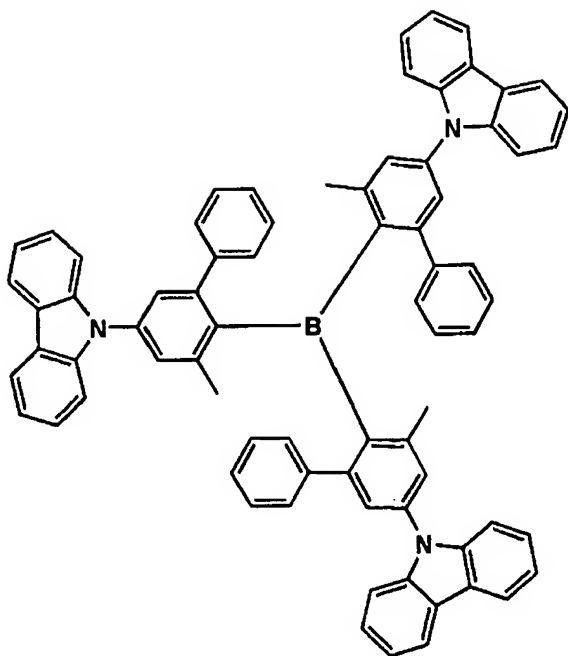


20

30

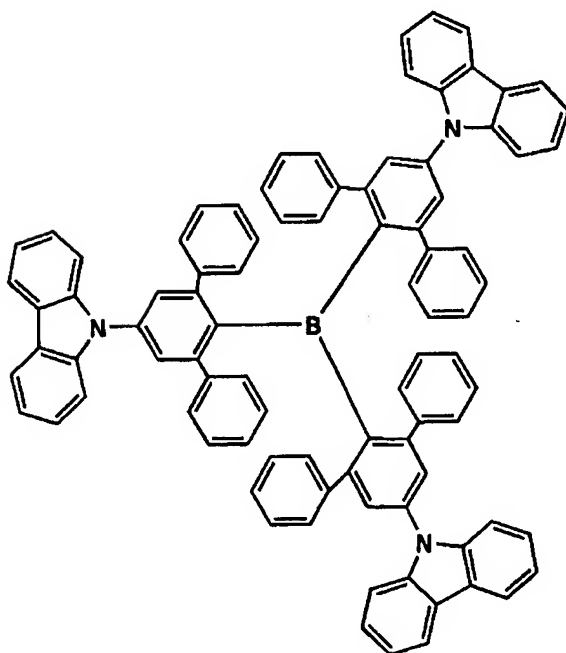
40

【 0 2 3 7 】  
【 化 2 3 0 】

**B4-7**

10

20

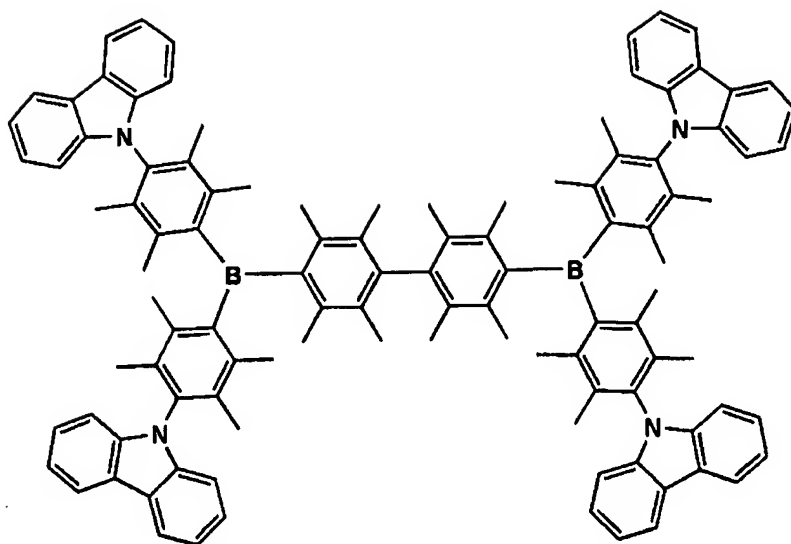
**B4-8**

30

40

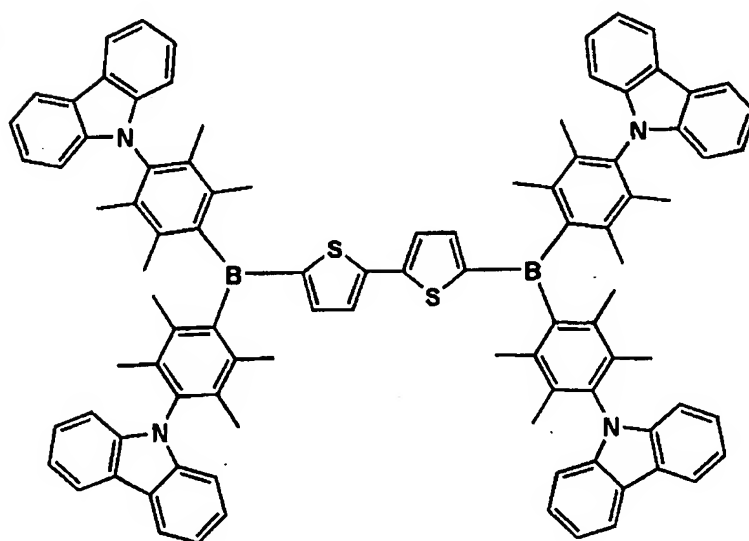
【 0 2 3 8 】  
【 化 2 3 1 】

B4-9



10

B4-10

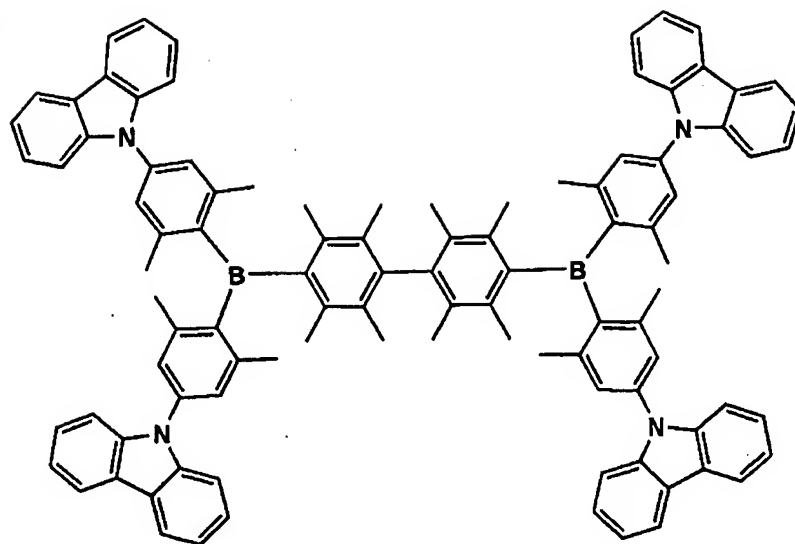


20

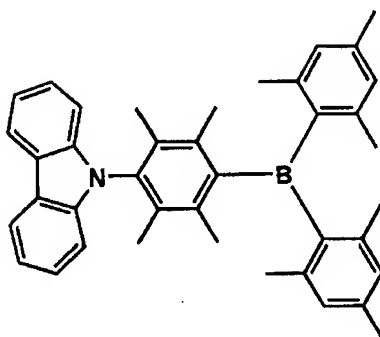
30

【 0 2 3 9 】

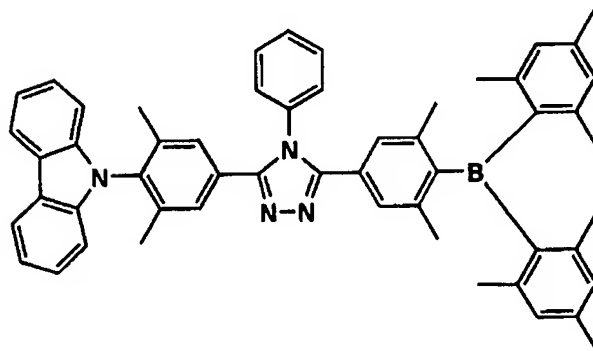
【 化 2 3 2 】

**B4-11**

10

**B4-12**

20

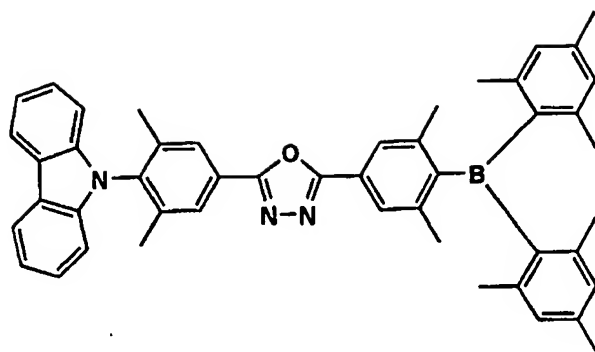
**B4-13**

30

40

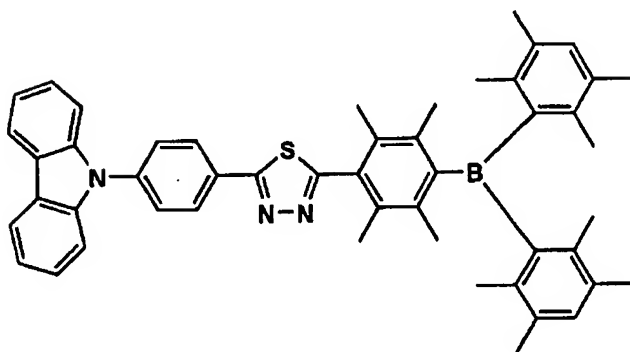
【 0 2 4 0 】  
【 化 2 3 3 】

B4-14



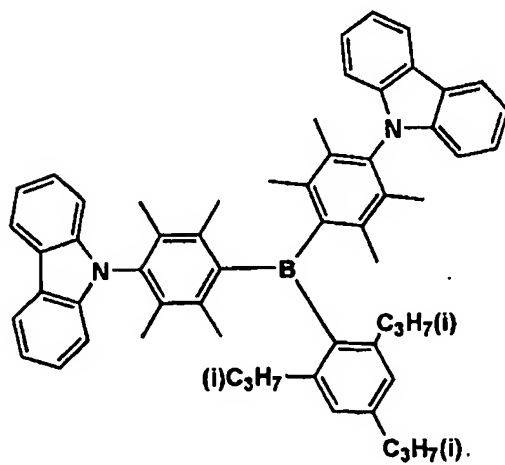
10

B4-15



20

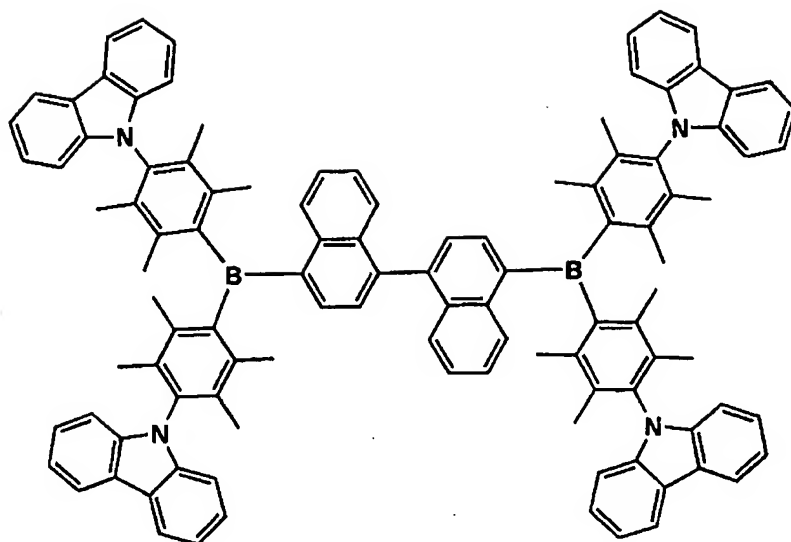
B4-16



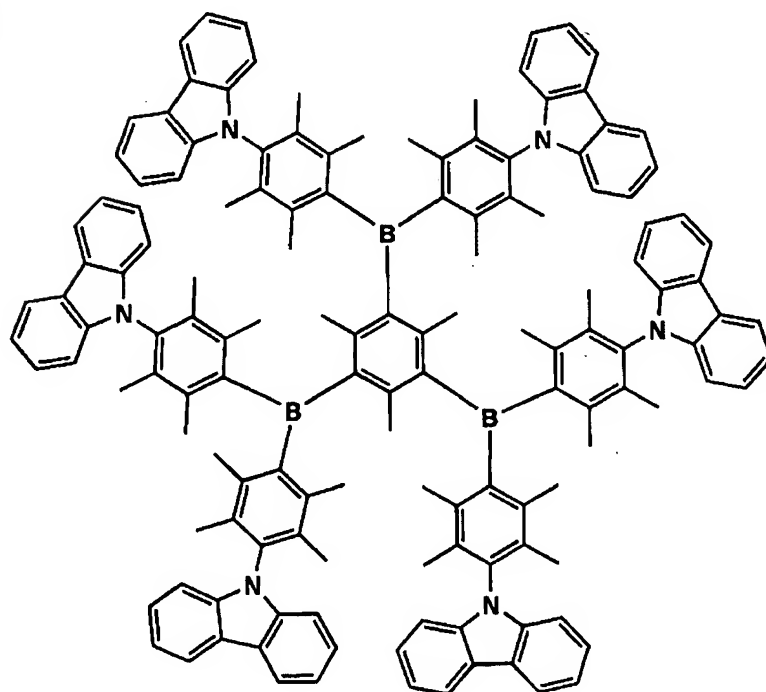
30

40

[ 0 2 4 1 ]  
[ 化 2 3 4 ]

**B4-17**

10

**B4-18**

20

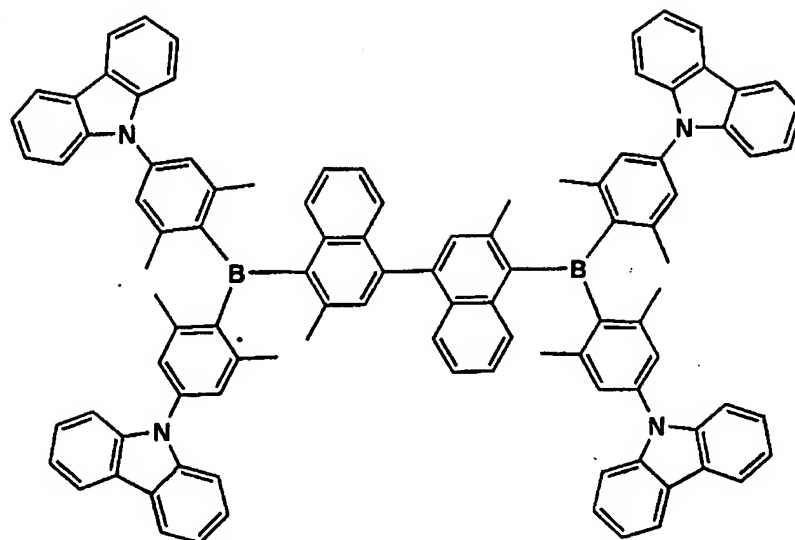
30

40

【 0 2 4 2 】  
【 化 2 3 5 】

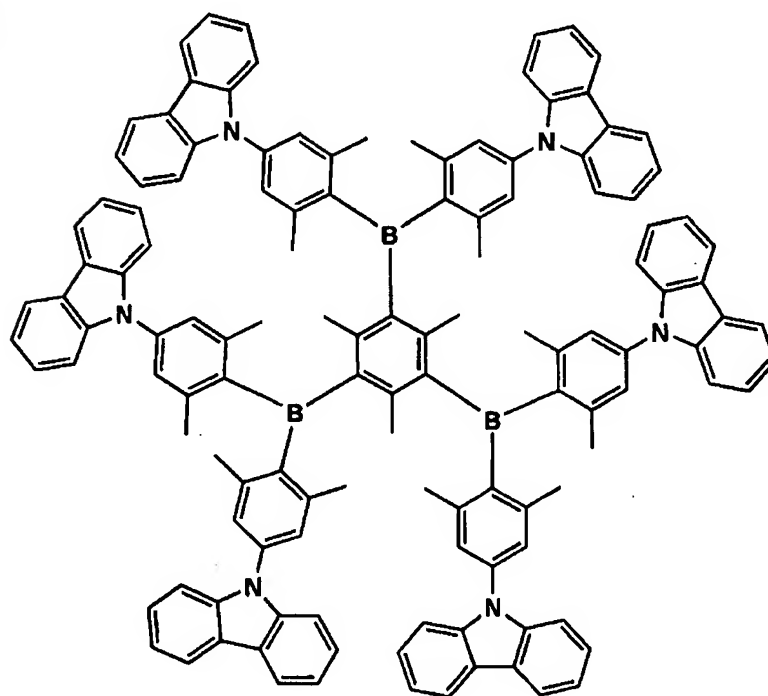


B4-19



10

B4-20



20

30

40

## 【0243】

本発明の化合物は、特開2001-93670及びJ. Am. Chem. Soc. 120, p. 9714 (1998)記載の方法に準じて合成することができる。

## 【0244】

一般式(B5-1)で表される化合物について説明する。

## 【0245】

式中、 $R_{11} \sim R_{14}$ は水素原子又は一価の置換基を表し、少なくとも1つは炭素原子、酸素原子、硫黄原子又はケイ素原子を介して結合する置換基を表す。

50

## 【0246】

$R_{11} \sim R_{14}$  で表される一価の置換基としては、アルキル基（メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等）、アリール基（フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基等）、アルケニル基（ビニル基、プロペニル基、スチリル基等）、アルキニル基（エチニル基等）、アルキルオキシ基（メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等）、アリールオキシ基（フェノキシ基等）、アルキルチオ基（メチルチオ基、エチルチオ基、*i*-プロピルチオ基等）、アリールチオ基（フェニルチオ基等）、アミノ基、アルキルアミノ基（ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等）、アリールアミノ基（アニリノ基、ジフェニルアミノ基等）、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等）、シアノ基、ニトロ基、複素環基（ピロール基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等）、シリル基（トリメチルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、トリフェニルシリル基等）等が挙げられる。

10

## 【0247】

それぞれの置換基は更に置換基を有していても良い。又、置換基同士が結合し、環を形成しても良い。

## 【0248】

一般式（B5-1）において、好ましくは  $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$  及び  $R_{14}$  のうち少なくとも1つが炭化水素芳香族基（上記のアリール基）であり、更に好ましくは一般式（B5-2）で表される場合である。

20

## 【0249】

一般式（2）において  $Ar_{21} \sim Ar_{23}$  は芳香族基を表し、 $R_{21} \sim R_{23}$  は一価の置換基を表す。 $l$ 、 $m$  及び  $n$  はそれぞれ 0～4 の整数を表す。

## 【0250】

好ましくは  $R_{21} \sim R_{23}$  がアルキル基であり、 $l$ 、 $m$  及び  $n$  が 2～4 の場合であり、更に好ましくは  $Ar_{21} \sim Ar_{23}$  のうち少なくとも1つがチエニル基の時である。尚、 $l$ 、 $m$ 、 $n$  が 2～4 の場合、対応する複数の  $R_{21}$ 、 $R_{22}$  及び  $R_{23}$  は同一でも異なっても良い。

30

## 【0251】

又、一般式（B5-1）で表される化合物が一般式（B5-3）で表される特定構造の縮合環であることも好ましい。

## 【0252】

一般式（B5-3）において、 $R_{31}$  は水素原子又は一価の置換基を表し、 $n_3$  は 0～2 を表し、 $Z_3$  は 5 員環を形成するのに必要な原子群を表す。

## 【0253】

$Z_3$  で形成される 5 員環は、更に置換基を有していてもよい。 $R_{31}$  で表される一価の置換基としては、 $R_{11} \sim R_{14}$  と同様のものが挙げられる。 $n_3$  が 2 の場合、複数の  $R_{31}$  は同一でも異なっても良い。

40

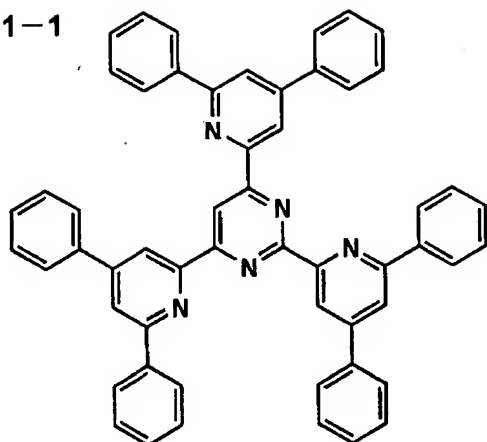
## 【0254】

以下に、具体的化合物例を示すが、これらに限定されるものではない。

## 【0255】

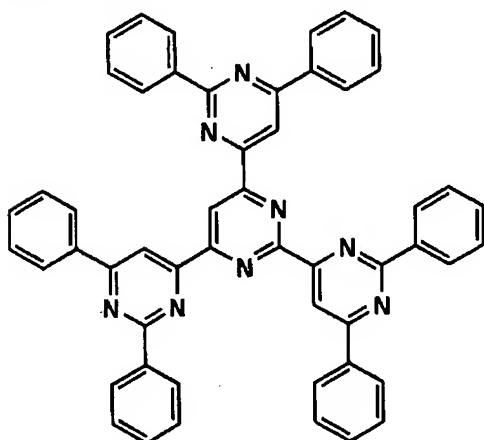
## 【化236】

B5-1-1

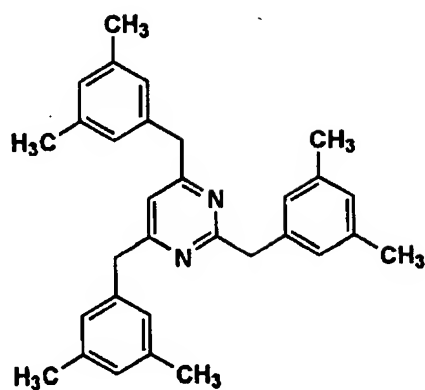


10

B5-1-2

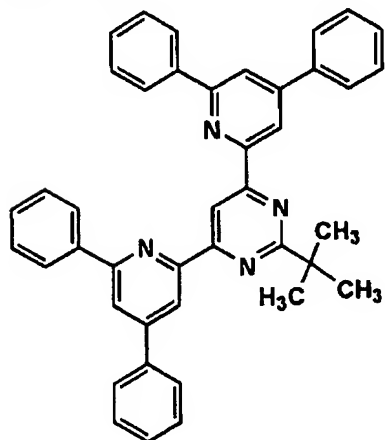


B5-1-3

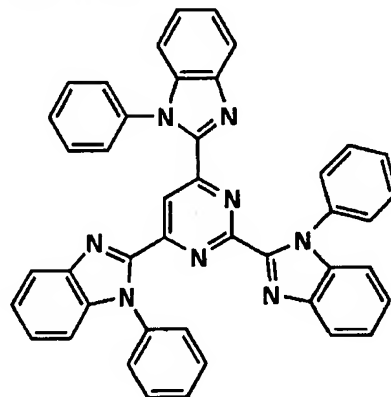


20

B5-1-4



B5-1-5



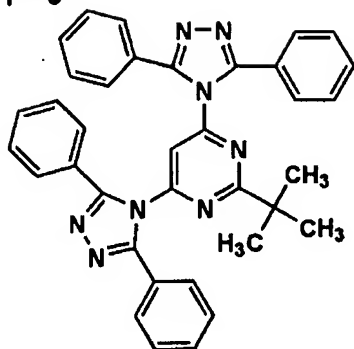
30

40

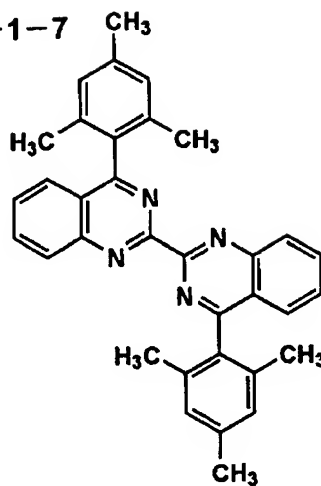
【 0 2 5 6 】

【 化 2 3 7 】

B5-1-6

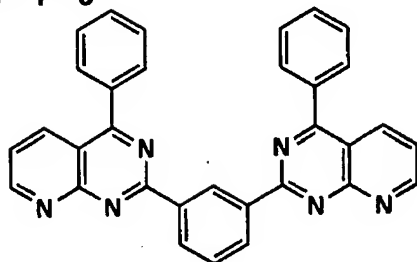


B5-1-7

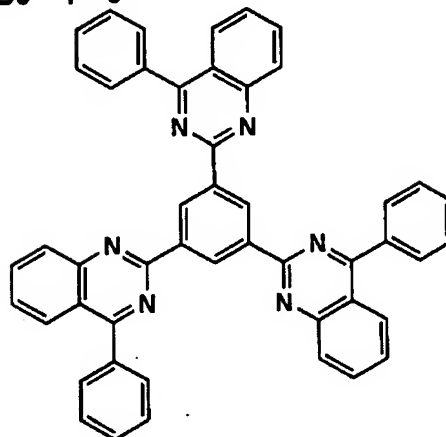


10

B5-1-8

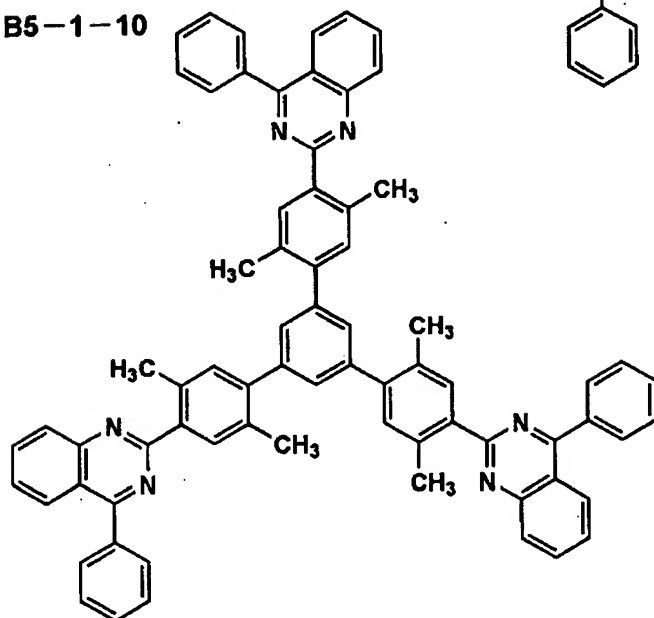


B5-1-9



20

B5-1-10

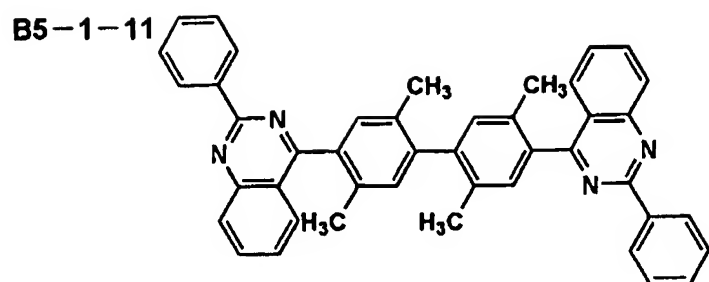


30

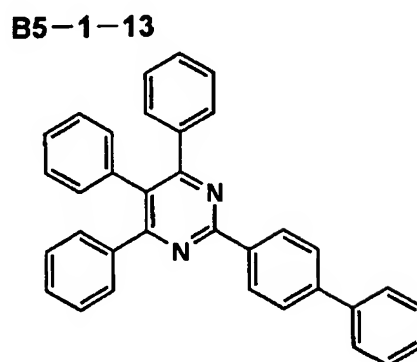
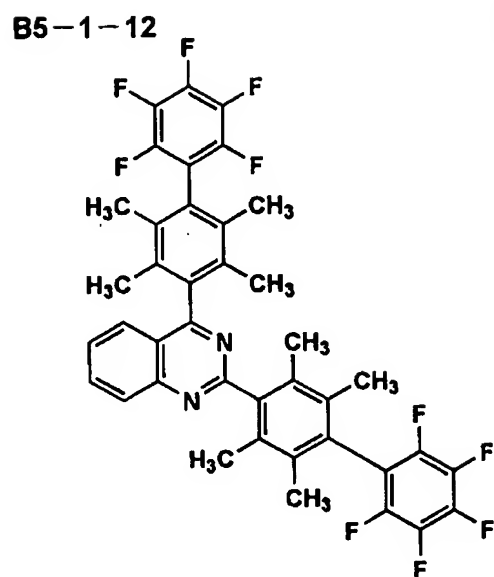
【 0 2 5 7 】

【 化 2 3 8 】

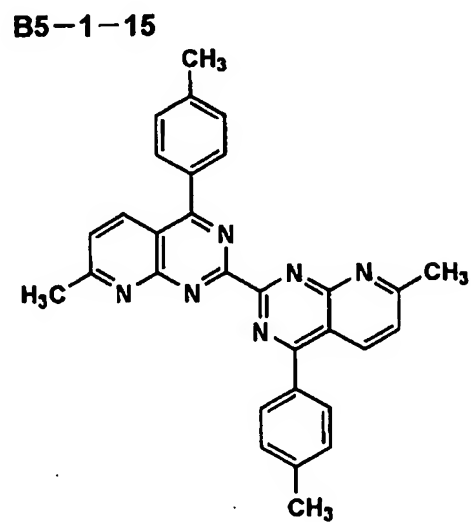
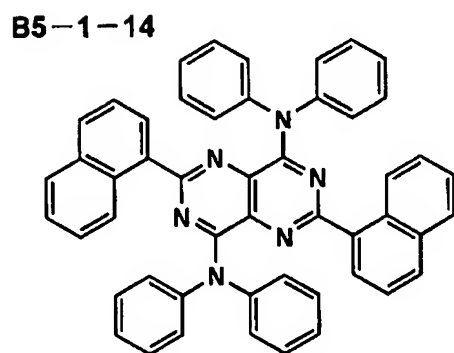
40



10



20

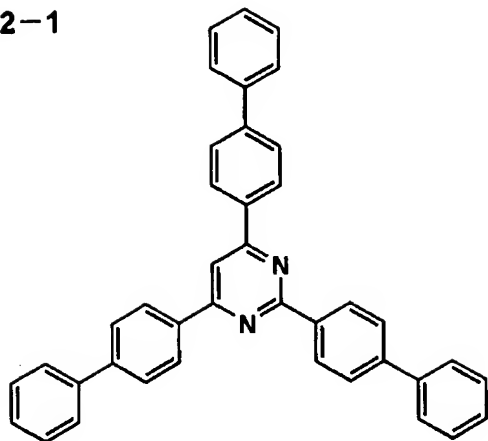


30

40

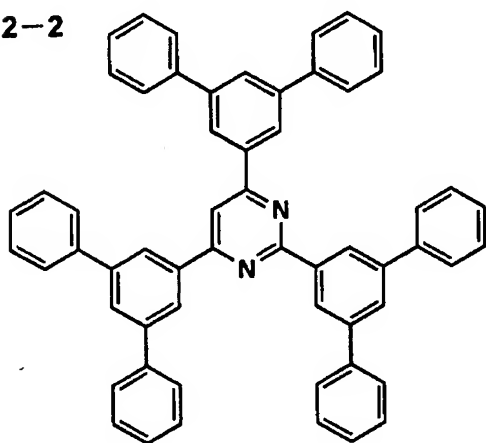
[ 0 2 5 8 ]  
[ 化 2 3 9 ]

B5-2-1



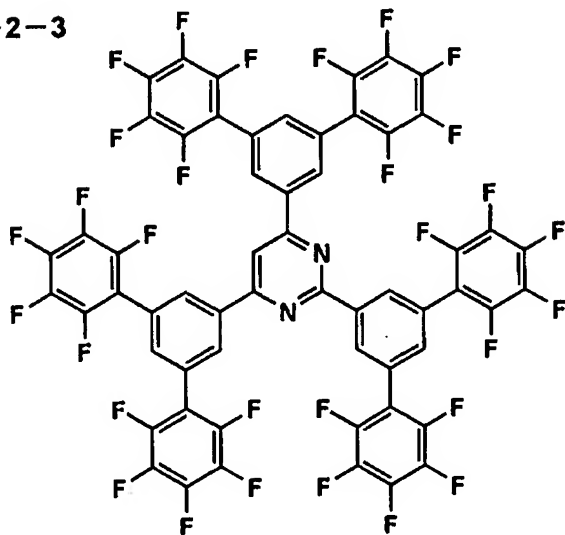
10

B5-2-2



20

B5-2-3



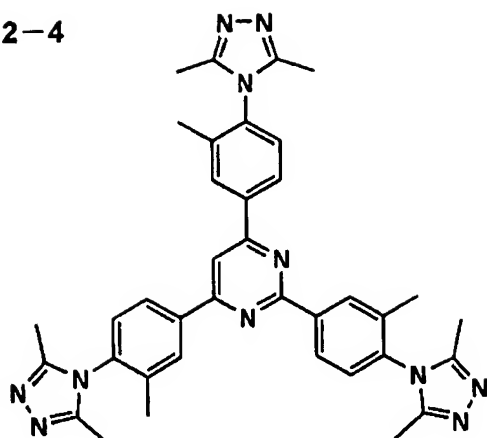
30

40

【 0 2 5 9 】

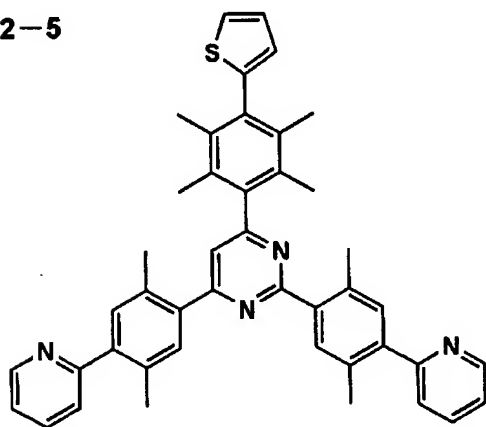
【 化 2 4 0 】

B5-2-4



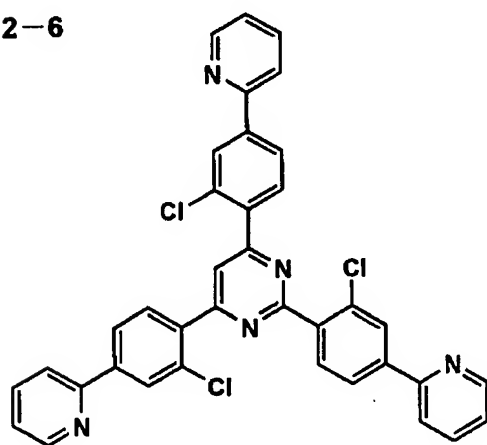
10

B5-2-5



20

B5-2-6



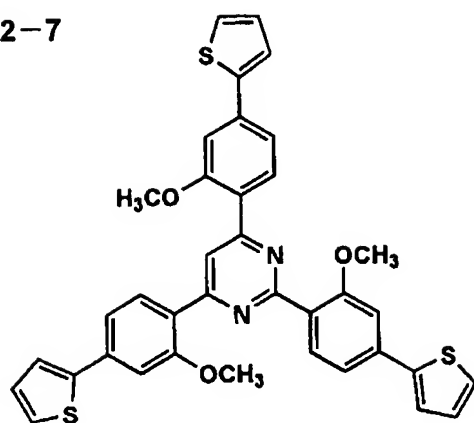
30

40

【 0 2 6 0 】

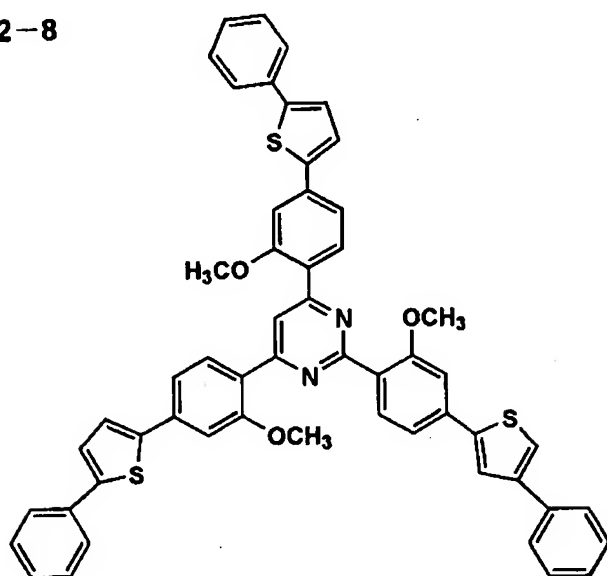
【 化 2 4 1 】

B5-2-7



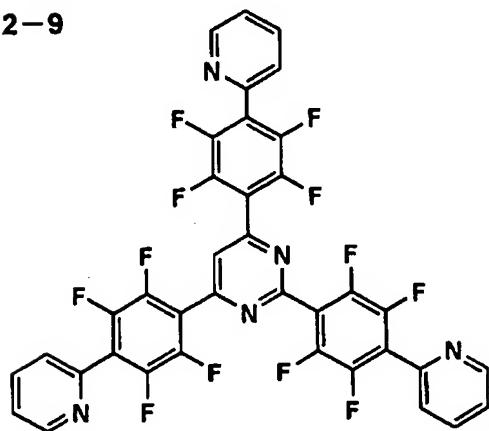
10

B5-2-8



20

B5-2-9



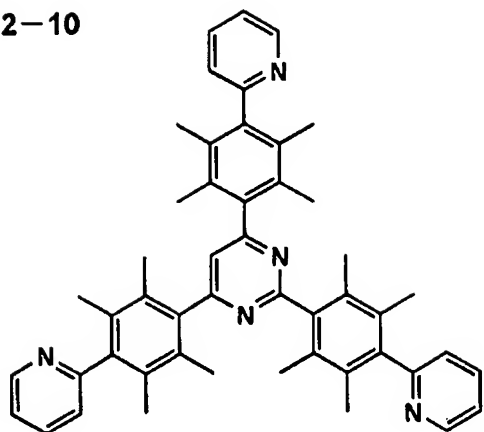
40

【 0 2 6 1 】

【 化 2 4 2 】

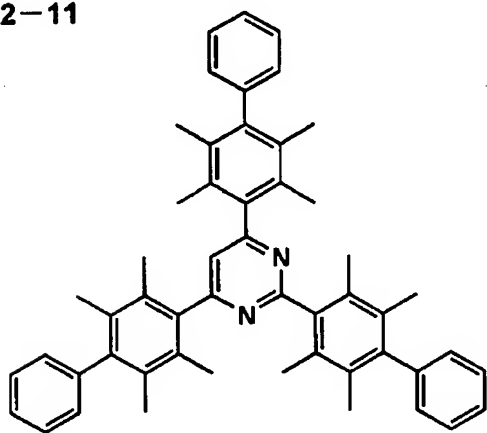


B5-2-10



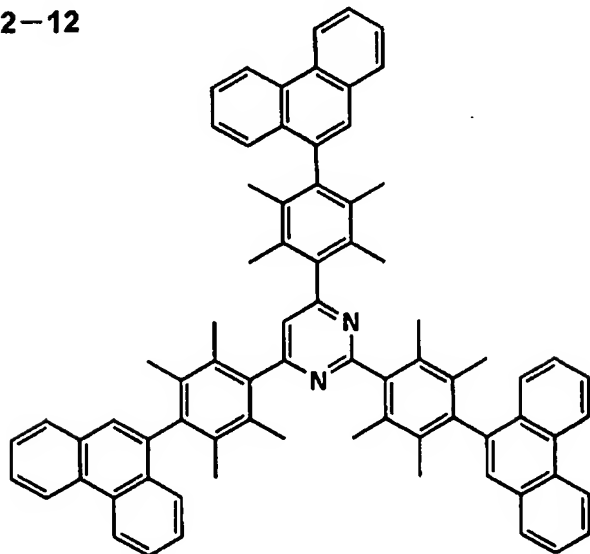
10

B5-2-11



20

B5-2-12



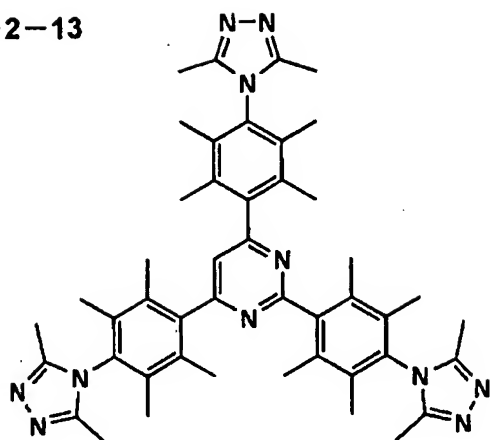
30

40

【 0 2 6 2 】

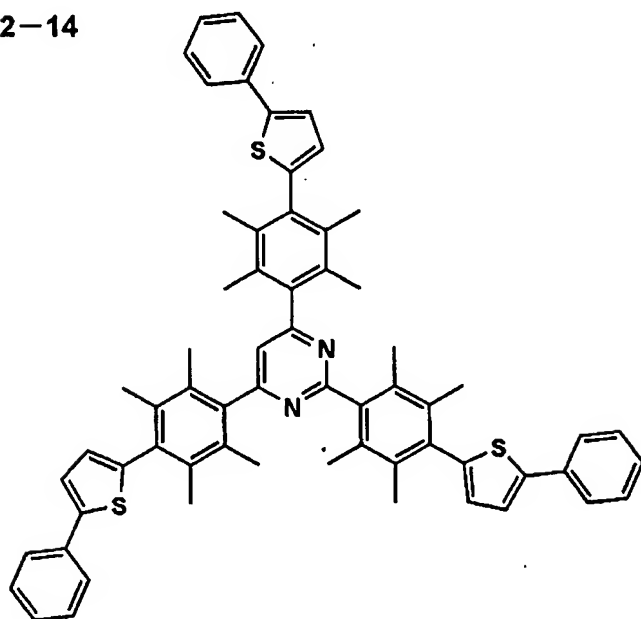
【 化 2 4 3 】

B5-2-13



10

B5-2-14



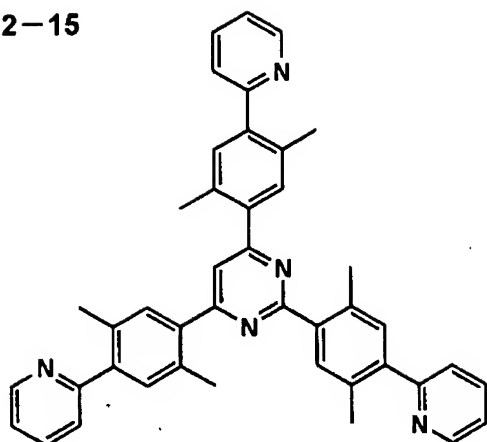
20

30

【 0 2 6 3 】

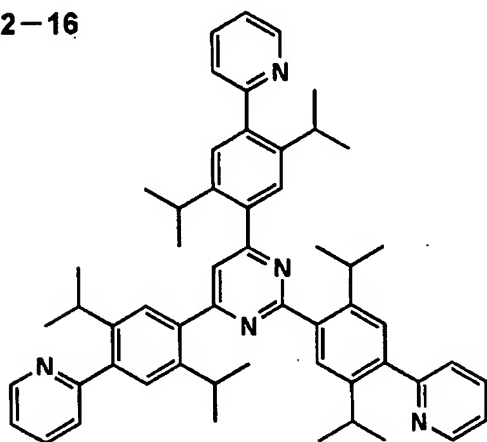
【 化 2 4 4 】

B5-2-15



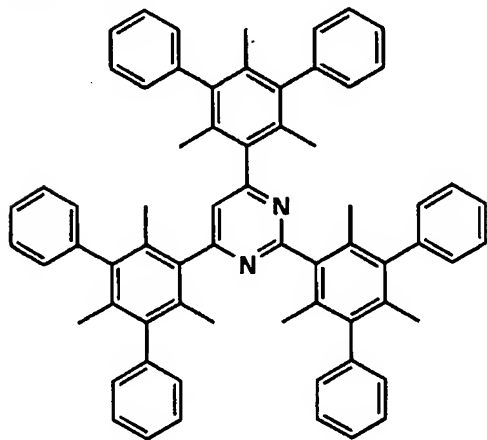
10

B5-2-16

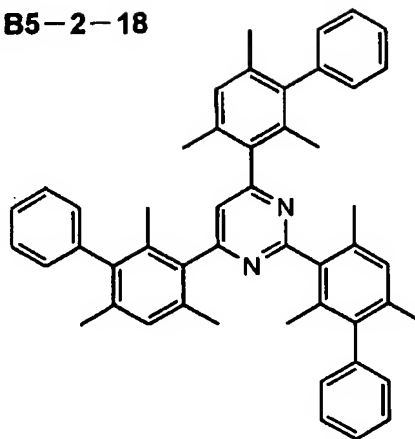


20

B5-2-17



B5-2-18



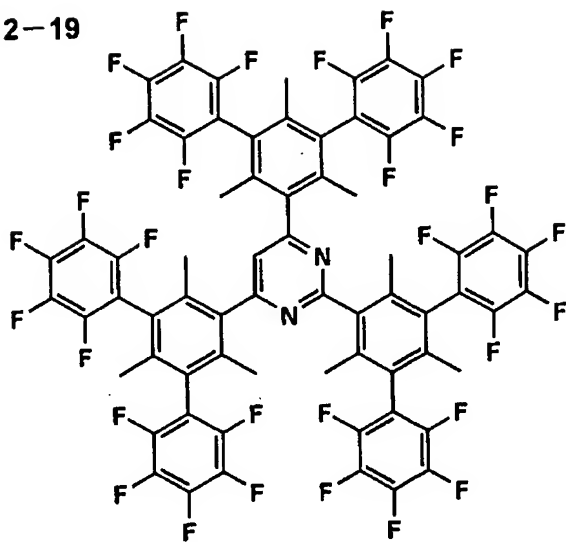
30

40

【 0 2 6 4 】

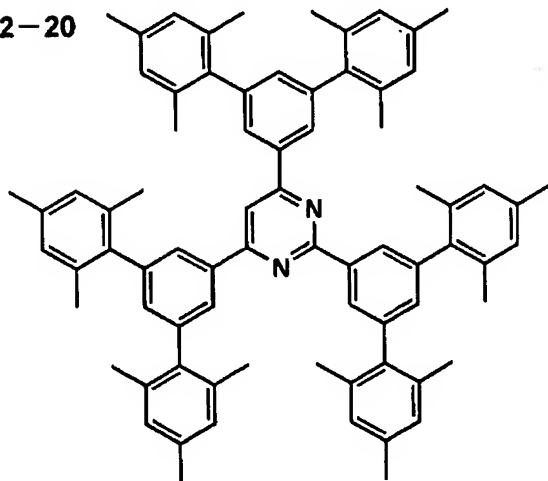
【 化 2 4 5 】

B5-2-19



10

B5-2-20



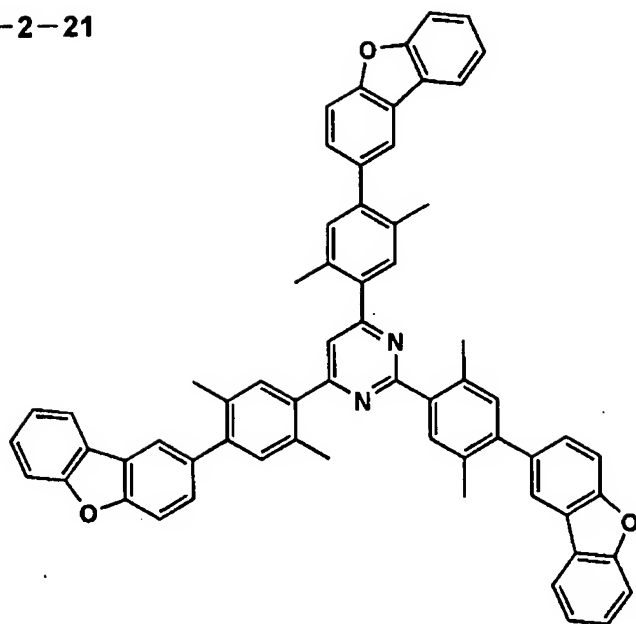
20

30

【 0 2 6 5 】

【 化 2 4 6 】

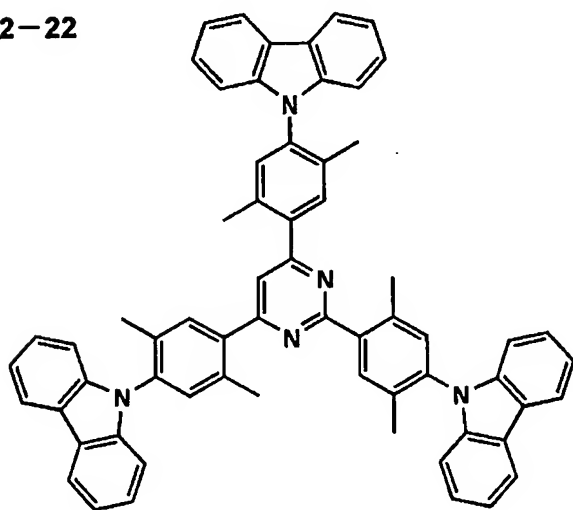
B5-2-21



10

20

B5-2-22

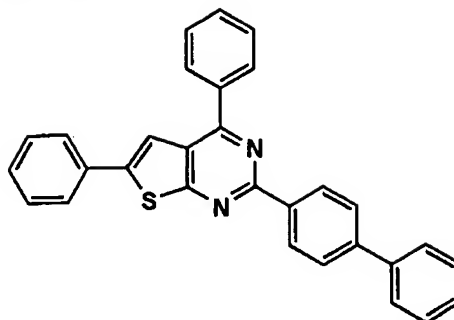
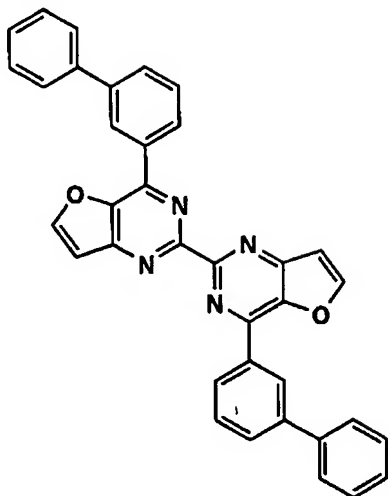


30

【 0 2 6 6 】

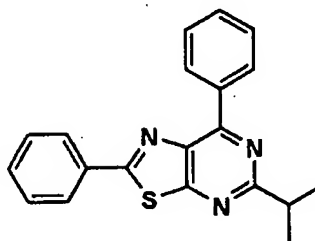
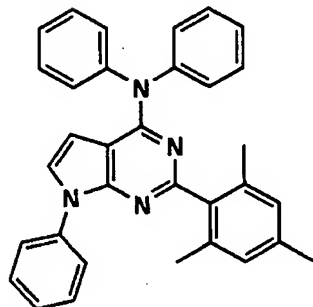
【 化 2 4 7 】

**B5-3-2**



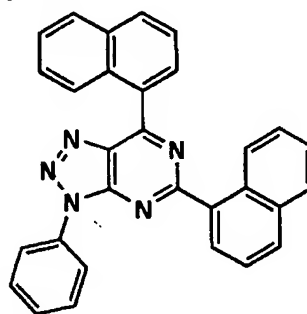
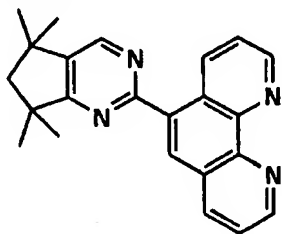
10

**B5-3-4**



20

**B5-3-6**



30

40

【 0 2 6 8 】

【 0 2 6 9 】

【 0 2 7 0 】

50

は6員芳香族基又は5員単環芳香族基を表す。 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_3$ 、 $Ar_{11}$ 、 $Ar_{12}$ 及び $Ar_{13}$ で表される6員芳香族基は、更に縮合環を形成しても良い。具体的には炭化水素芳香族基（フェニル基、ナフチル基、フェナンスリル基、アントリル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等）又は複素芳香族基（ピリジル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、キノリル基、トリアジニル基、キナゾキニル基、アクリジニル基等）を表す。

【0271】

$Ar_{11}$ 、 $Ar_{12}$ 、 $Ar_{13}$ で表される5員単環芳香族基としては、ピロリル基、チエニル基、フリル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基等が挙げられる。 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_3$ 、 $Ar_{11}$ 、 $Ar_{12}$ 及び $Ar_{13}$ は更に置換基を有していても良い。

10

【0272】

一般式(B6-1)で表される化合物は、好ましくは $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_3$ 、 $Ar_{11}$ 、 $Ar_{12}$ 及び $Ar_{13}$ が全て単環芳香族基であり、更に好ましくは $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 及び $Ar_3$ が炭化水素芳香族基であり、 $Ar_{11}$ 、 $Ar_{12}$ 、 $Ar_{13}$ が6員複素芳香族基である場合、又は $Ar_{11}$ 、 $Ar_{12}$ 、 $Ar_{13}$ の少なくとも1つがチエニル基である場合である。

【0273】

本発明に用いられるトリアジン誘導体は、更に好ましくは一般式(B6-2)で表される場合である。一般式(B6-2)において $Ar_{21}$ 、 $Ar_{22}$ 及び $Ar_{23}$ は、6員芳香族基又は5員単環芳香族基を表し、 $R_1$ 、 $R_2$ 及び $R_3$ は一価の置換基を表す。 $l$ 、 $m$ 及び $n$ はそれぞれ1~4の整数を表す。 $Ar_{21}$ 、 $Ar_{22}$ 及び $Ar_{23}$ で表される6員芳香族基、5員芳香族基としては一般式(B6-1)中の $Ar_{11}$ 、 $Ar_{12}$ 、 $Ar_{13}$ と同様のものが挙げられる。

20

【0274】

$R_1$ 、 $R_2$ 及び $R_3$ で表される一価の置換基としては、アルキル基（メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等）、アリール基（フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等）、アルケニル基（ビニル基、プロペニル基、スチリル基等）、アルキニル基（エチニル基等）、アルキルオキシ基（メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等）、アリールオキシ基（フェノキシ基等）、アルキルチオ基（メチルチオ基、エチルチオ基、i-プロピルチオ基等）、アリールチオ基（フェニルチオ基等）、アミノ基、アルキルアミノ基（ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等）、アリールアミノ基（アニリノ基、ジフェニルアミノ基等）、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等）、シアノ基、ニトロ基、複素環基（ピロール基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等）等が挙げられる。

30

【0275】

一般式(B6-2)において、好ましくは $R_1$ 、 $R_2$ 及び $R_3$ がアルキル基であり、 $l$ 、 $m$ 及び $n$ が2~4のときであり、最も好ましくは、 $R_1$ 、 $R_2$ 及び $R_3$ がメチル基であり、 $l$ 、 $m$ 及び $n$ が4のときである。

40

【0276】

一般式(B6-2)において、好ましくは $Ar_{21}$ 、 $Ar_{22}$ 又は $Ar_{23}$ のうち少なくとも1つがチエニル基である。

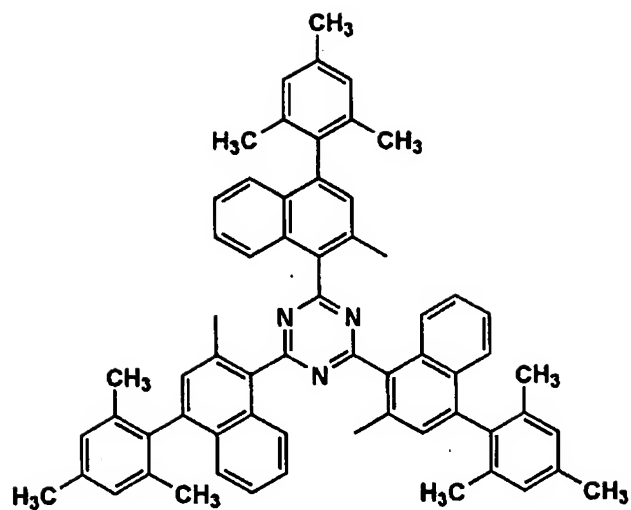
【0277】

以下に、具体的化合物例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0278】

【化248】

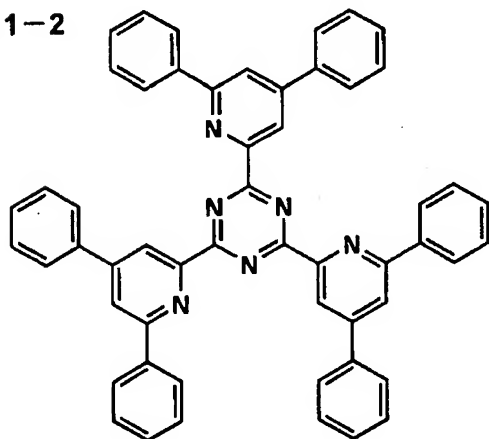
## B6-1-1



10

20

## B6-1-2



30

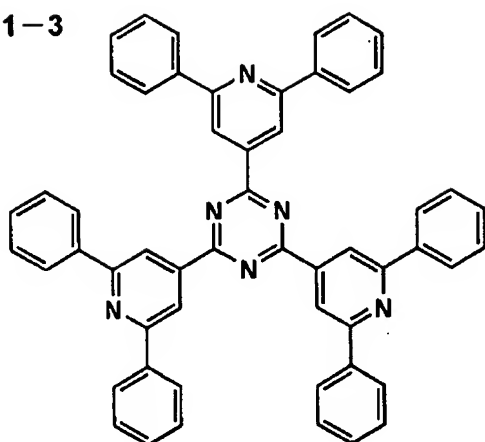
【 0 2 7 9 】

【 化 2 4 9 】

40

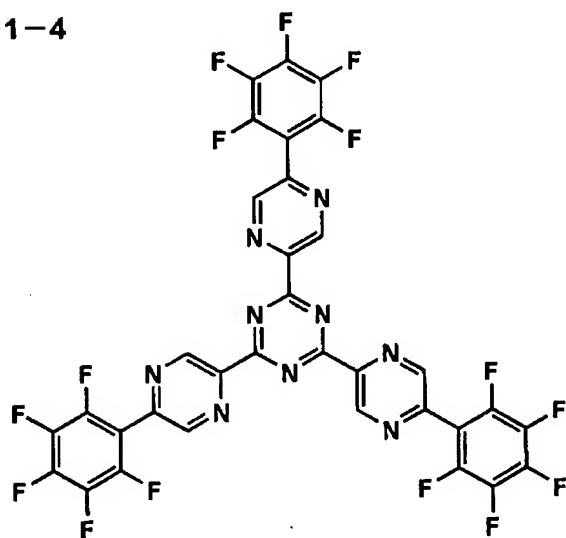


B6-1-3



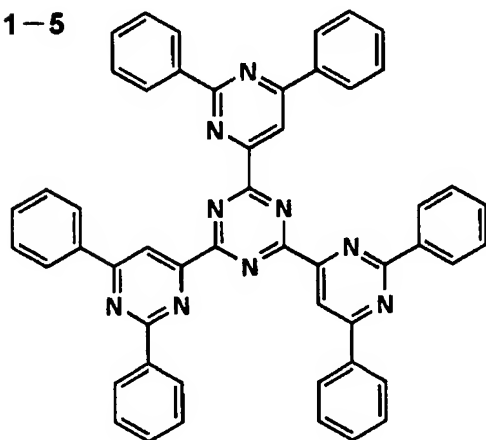
10

B6-1-4



20

B6-1-5

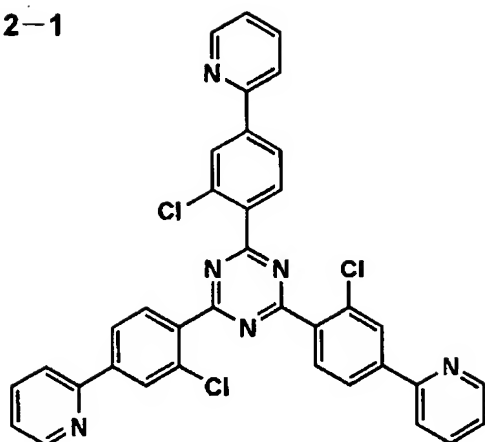


40

【 0 2 8 0 】

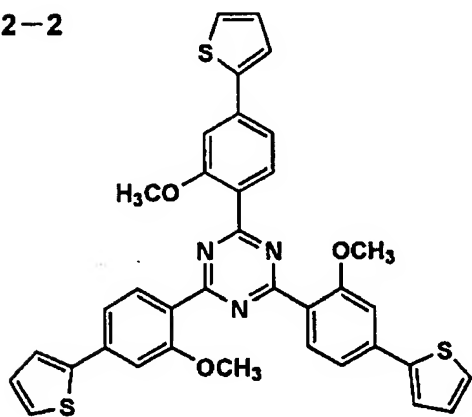
【 化 2 5 0 】

B6-2-1



10

B6-2-2



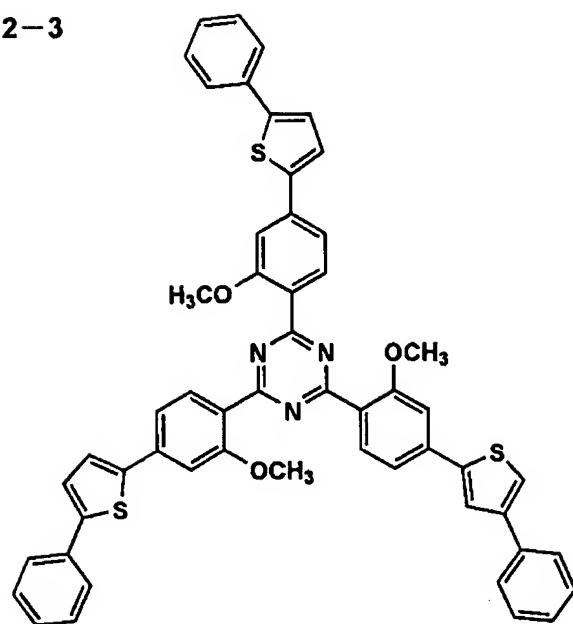
20

【 0 2 8 1 】

【 化 2 5 1 】

30

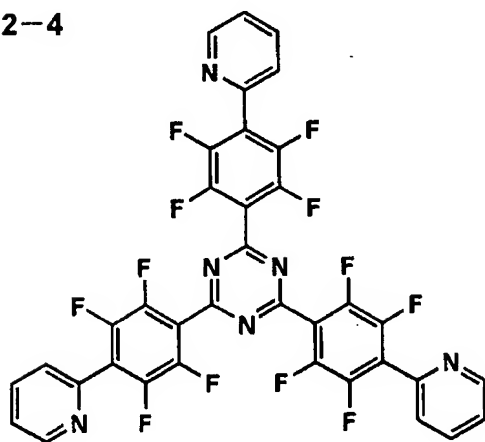
B6-2-3



10

20

B6-2-4

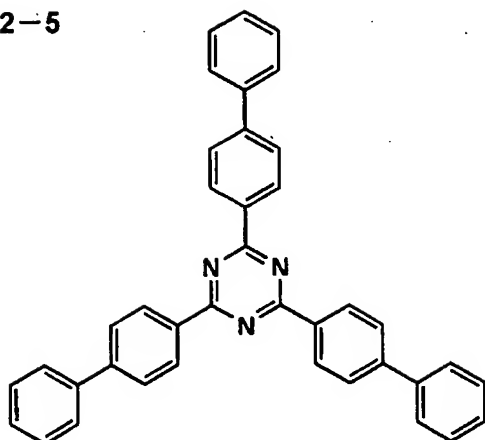


30

【 0 2 8 2 】

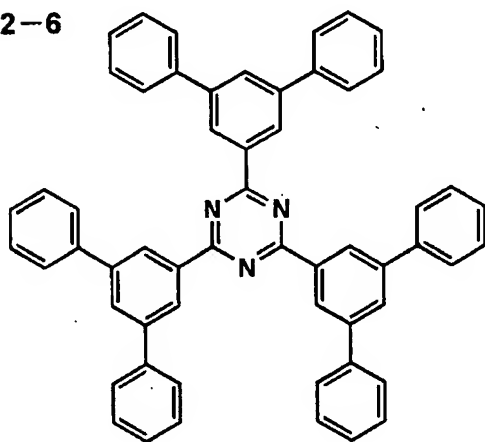
【 化 2 5 2 】

B6-2-5



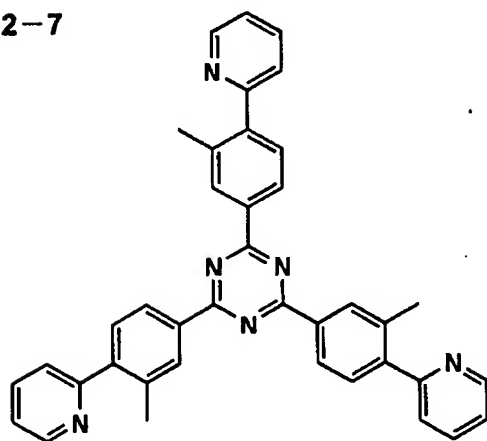
10

B6-2-6



20

B6-2-7



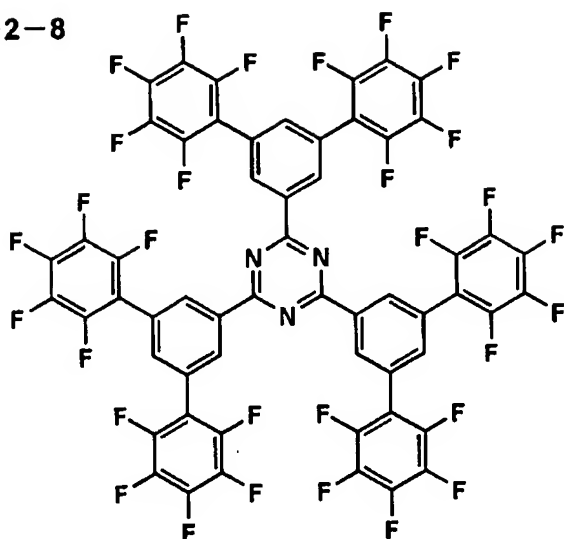
30

40

【 0 2 8 3 】

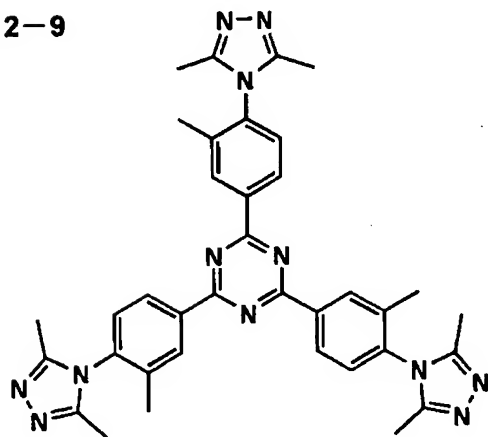
【 化 2 5 3 】

B6-2-8



10

B6-2-9



2-11

Cc1cc(C)c(C)c(C)c1C2=CC(=CC=C2N)C3=C(C)C(C)=C(C)C3C4=CC(=CC=C4N)C5=C(C)C(C)=C(C)C5

2-12

The chemical structure of compound 2-12 is a 1,3,5-triazine derivative. It features a central 1,3,5-triazine ring. At the 2-position of the triazine ring, there is a 2,4,6-trimethylphenyl group with a phenyl substituent at the 1-position. At the 4-position of the triazine ring, there is a 2,4,6-trimethylphenyl group with a phenyl substituent at the 1-position. At the 6-position of the triazine ring, there is a 2,4,6-trimethylphenyl group with a phenyl substituent at the 1-position. The structure is symmetrical.

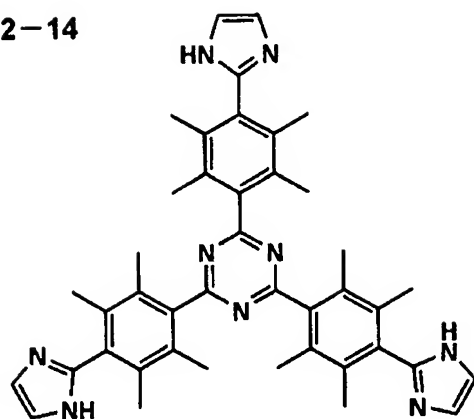
2-13

Chemical structure 2-13 is a complex molecule featuring a central benzene ring substituted with three methyl groups and a 1,2,3,4-tetrahydronaphthalene group. This central benzene ring is connected via a 1,3,5-triazine ring to two additional 1,2,3,4-tetrahydronaphthalene groups.

40

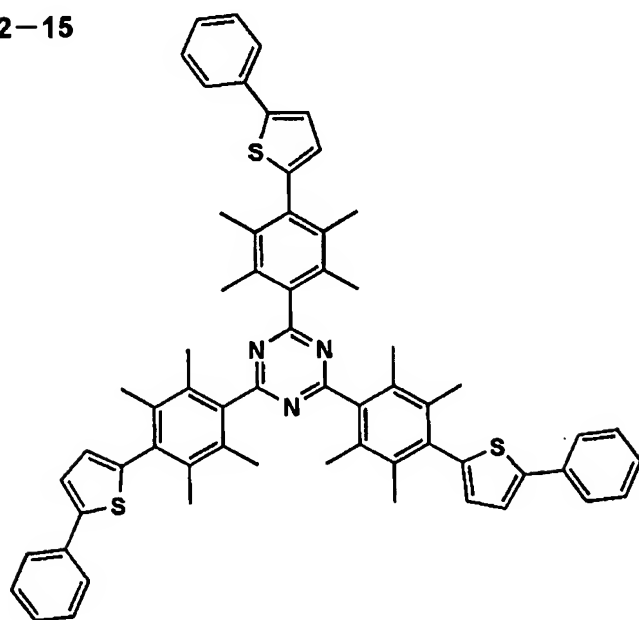
【 0 2 8 5 】  
【 化 2 5 5 】

**B6-2-14**



10

**B6-2-15**



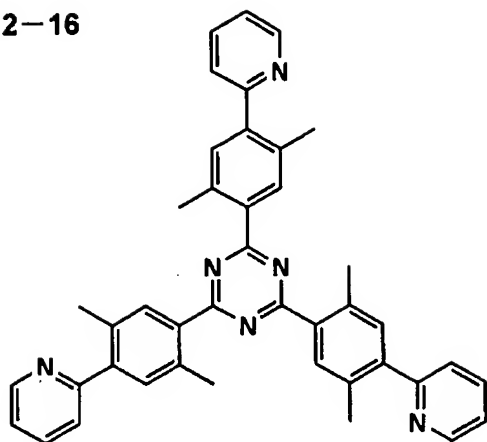
20

30

【 0 2 8 6 】

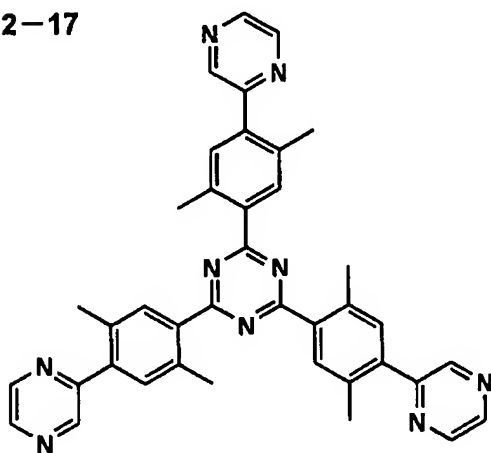
【化 2 5 6】

B6-2-16



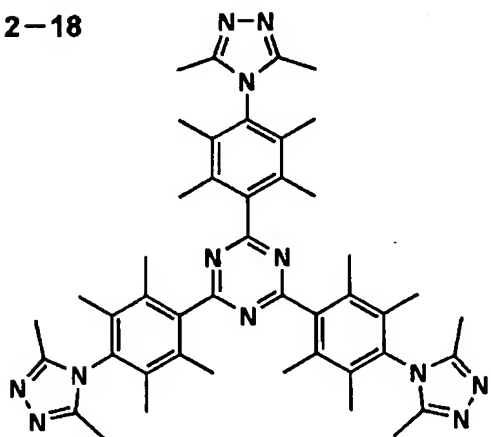
10

B6-2-17



20

B6-2-18



30

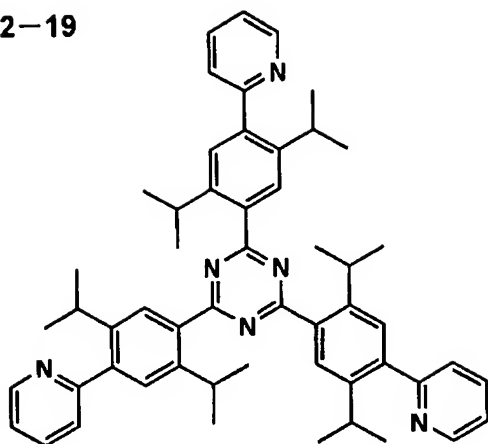
40

【 0 2 8 7 】

【 化 2 5 7 】

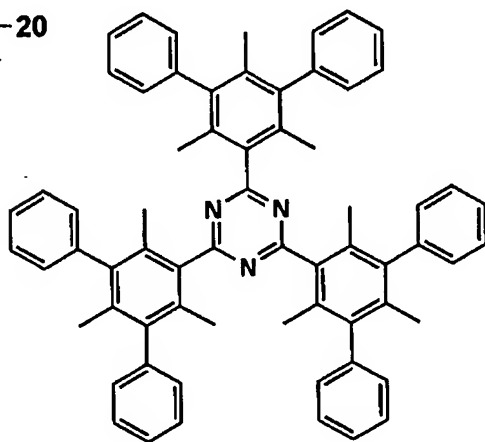


B6-2-19



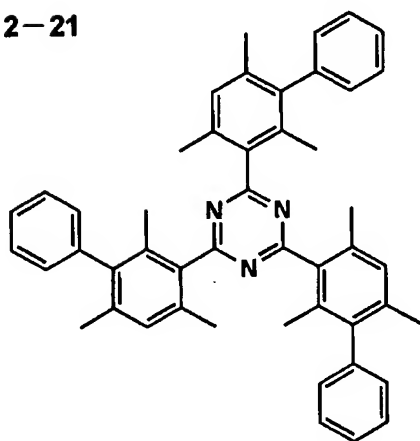
10

B6-2-20



20

B6-2-21



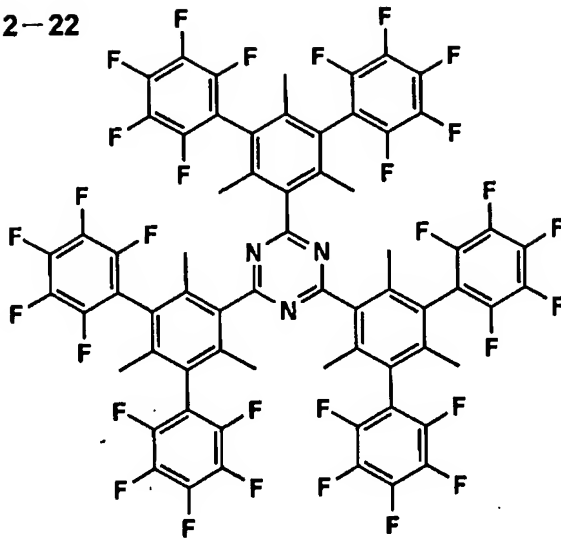
30

40

【 0 2 8 8 】

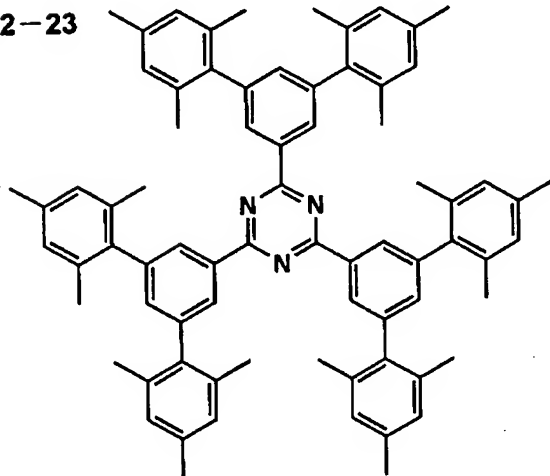
【 化 2 5 8 】

B6-2-22



10

B6-2-23



20

30

【0289】

又、これらの化合物の分子量は600～2000であることが好ましい。分子量が600～2000であるとT<sub>g</sub>（ガラス転移温度）が上昇し、熱安定性が向上し、素子寿命が改善される。より好ましい分子量は800～2000である。

【0290】

これらの化合物は公知の方法によって製造が可能であるが、例えば特開2001-93670等に記載された方法を用いることができる。

【0291】

次いで、本発明に係るカルバゾール誘導体化合物について説明する。

【0292】

本発明に係るカルバゾール誘導体化合物としては、前記一般式（B7-1）で表されるカルバゾール誘導体化合物である。

【0293】

一般式（B7-1）で表される誘導体化合物について説明する。

【0294】

一般式（B7-1）において、R<sub>1</sub>～R<sub>11</sub>は水素原子または置換基を表し、そのうち、

50

$R_1 \sim R_3$  の少なくとも1つは前記一般式 (B7-2) で表される部分構造を有する。

【0295】

一般式 (B7-1) において、 $R_1 \sim R_{11}$  で表される置換基としては、アルキル基 (例えば、メチル基、エチル基、*iso*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、トリフルオロメチル基、*tert*-ブチル基等)、シクロアルキル基 (例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アラルキル基 (例えば、ベンジル基等)、アルコキシアルキル基 (例えば、メトキシメチル基、メトキシエチル基、エトキシメチル基、プロポキシエチル基等)、アリール基 (例えば、フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基等)、アルケニル基 (例えば、2-プロペニル基、3-ブテニル基、1-メチル-3-プロペニル基、3-ペンテニル基、1-メチル-3-ブテニル基、4-ヘキセニル基、ビニル基、スチリル基等)、アルキニル基 (エチニル基、プロパルギル基等)、アルコキシル基 (例えば、メトキシ基、エトキシ基、*iso*-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基 (例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基 (例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、*iso*-プロピルチオ基等)、アリールチオ基 (フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アミノ基、アルキルアミノ基 (例えば、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等)、アリールアミノ基 (アニリノ基、ジフェニルアミノ基等)、ハロゲン原子 (フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基 (例えば、ピリジル基、チアゾリル基、オキサゾリル基、イミダゾリル基、フリル基、ピロリル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、セレナゾリル基、スルホラニル基、ピペリジニル基、ピラゾリル基、テトラゾリル基、ピロリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)、シリル基 (例えば、トリメチルシリル基、*tert*-ブチルジメチルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、トリフェニルシリル基等) 等が挙げられる。

10

20

【0296】

上記の置換基は、更にさらに置換基を有していても良い。

【0297】

一般式 (B7-2) において、 $Z_1$ 、 $Z_2$  は、各々芳香環 (芳香族炭素環、芳香族複素環) を形成するのに必要な原子群、 $R_{21} \sim R_{23}$  は、各々水素原子または置換基を表すが、少なくとも1つは置換基をあらわし、 $n$  は0または1を表す。

【0298】

$Z_1$ 、 $Z_2$  で形成される芳香環の例としては、ベンゼン環、ナフタレン環、フェナンスレン環、ピリジン環、ピリミジン環、ピラジン環、キノリン環等が挙げられ、好ましくは $Z_1$ 、 $Z_2$  が共にベンゼン環の時である。 $R_{21} \sim R_{23}$  で表される置換基としては、上記一般式 (B7-1) において、 $R_1 \sim R_{11}$  で表される置換基と同義である。

30

【0299】

一般式 (B7-1) において、好ましくは $R_1 \sim R_3$  で表される置換基のうち少なくとも1つがカルバゾール骨格 (カルバゾール母核ともいう) を部分構造として有するときである。一般式 (B7-2) において、好ましくは、 $R_{21} \sim R_{24}$  の少なくとも1つがアルキル基である時であり、より好ましくは $n$  が0であり、 $R_{23}$  及び $R_{24}$  が置換基である時、最も好ましいのは、 $n$  が1であり、 $R_{21} \sim R_{24}$  の全てが置換基である時である。

40

【0300】

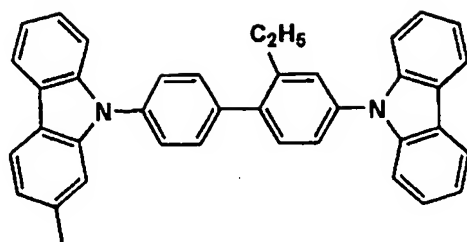
ここで、 $R_{23}$  及び $R_{24}$  で表される置換基、 $R_{21} \sim R_{24}$  で表される置換基とは、上記一般式 (B7-1) において、 $R_1 \sim R_{11}$  で表される置換基と同義である。

【0301】

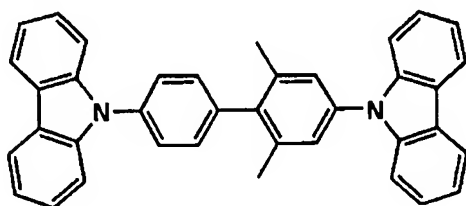
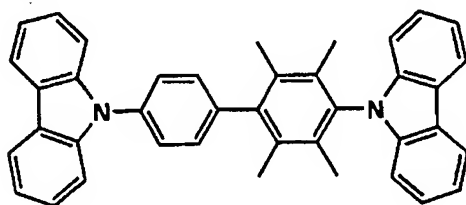
以下に、一般式 (B7-1) で表される化合物の具体的を示すが、本発明はこれらに限定されない。

【0302】

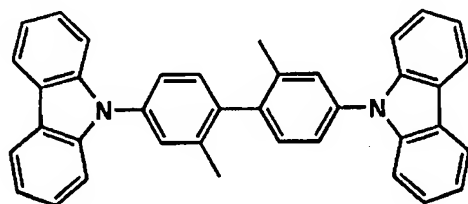
【化259】

**B7-1**

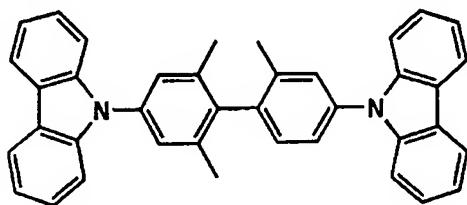
10

**B7-2****B7-3**

20

**B7-4**

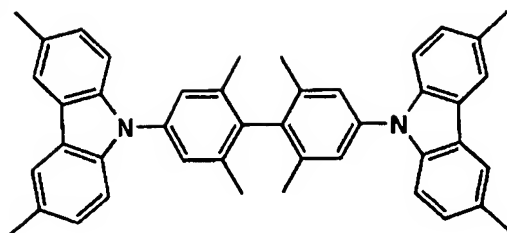
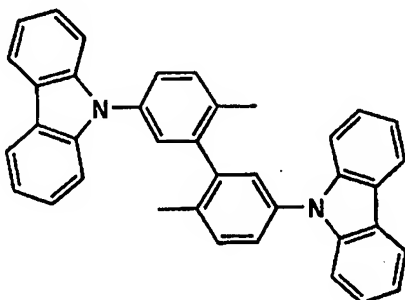
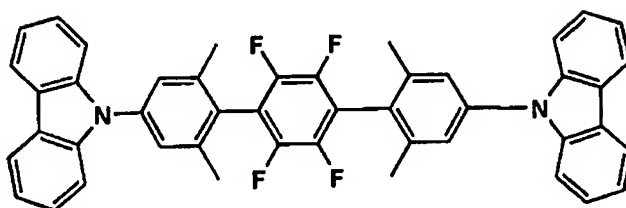
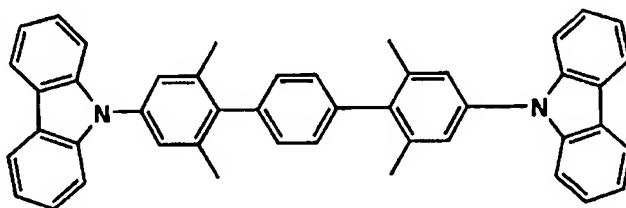
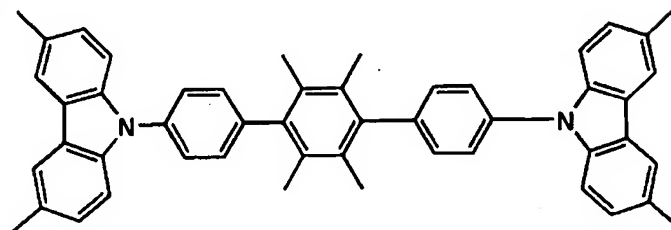
30

**B7-5**

40

【 0 3 0 3 】

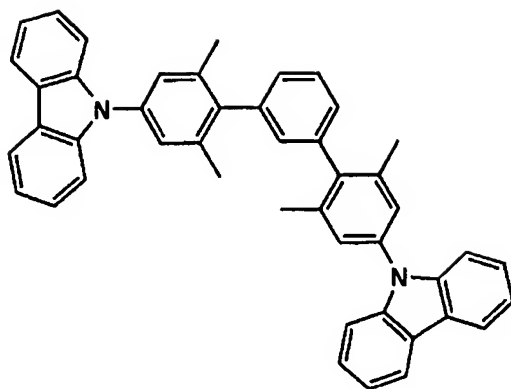
【 化 2 6 0 】

**B7-6****B7-7****B7-8****B7-9****B7-10**

【 0 3 0 4 】

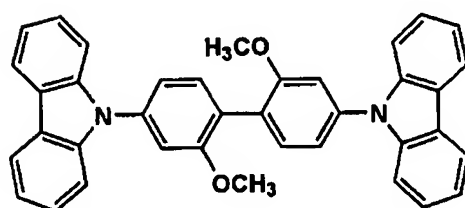
【 化 2 6 1 】

B7-11



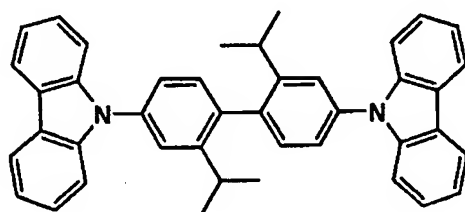
10

B7-12

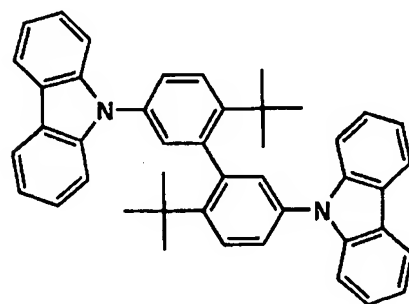


20

B7-13



B7-14

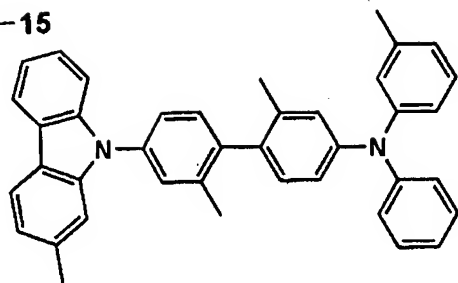


30

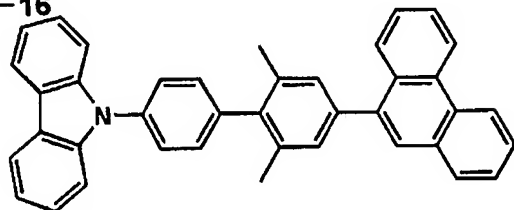
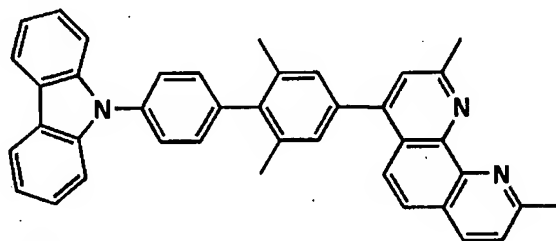
【 0 3 0 5 】

【 化 2 6 2 】

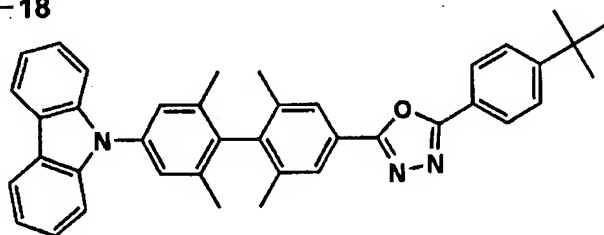
40

**B7-15**

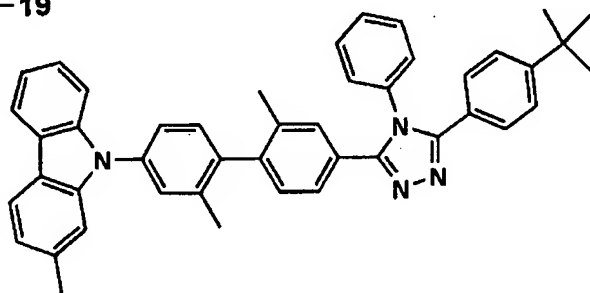
10

**B7-16****B7-17**

20

**B7-18**

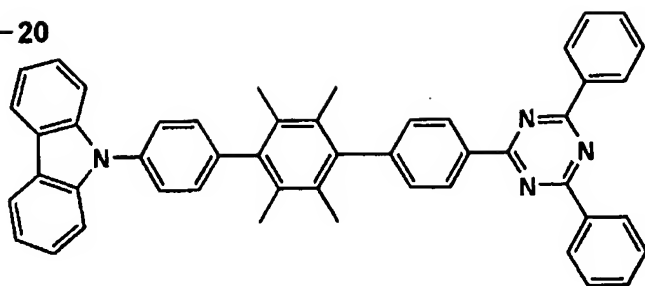
30

**B7-19**

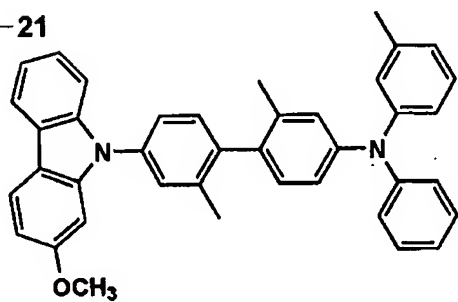
40

【 0 3 0 6 】

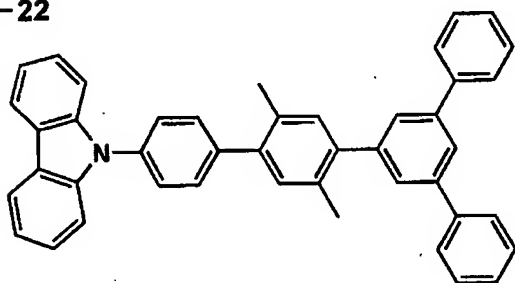
【 化 2 6 3 】

**B7-20**

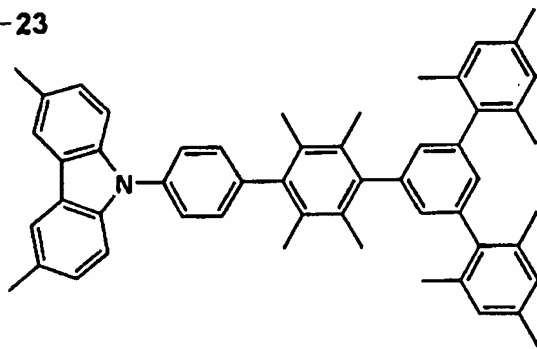
10

**B7-21**

20

**B7-22**

30

**B7-23**

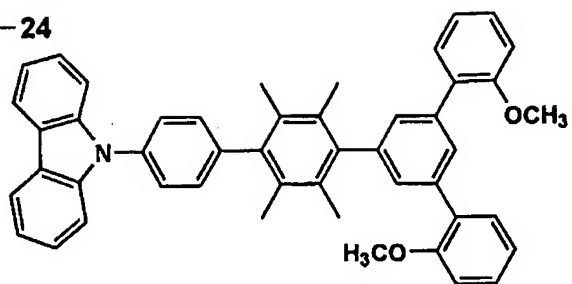
40

【 0 3 0 7 】

【 化 2 6 4 】

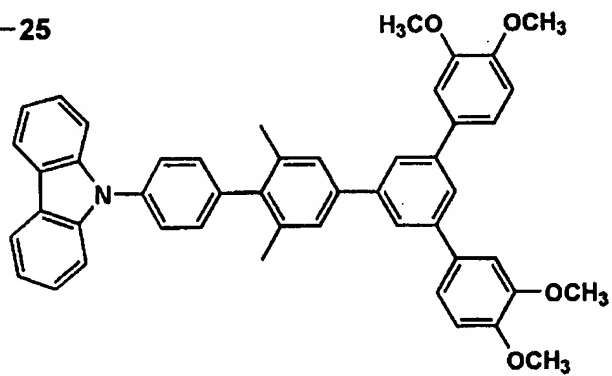


B7-24



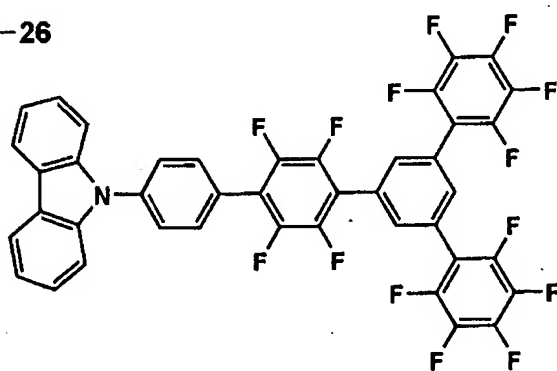
10

B7-25



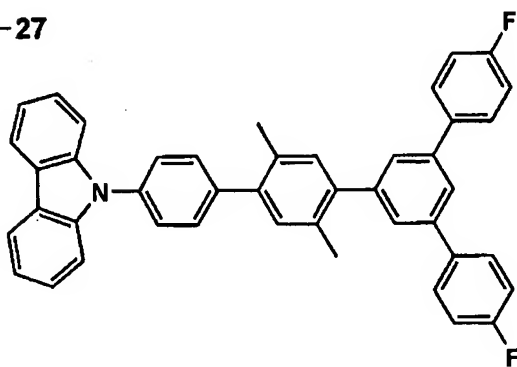
20

B7-26



30

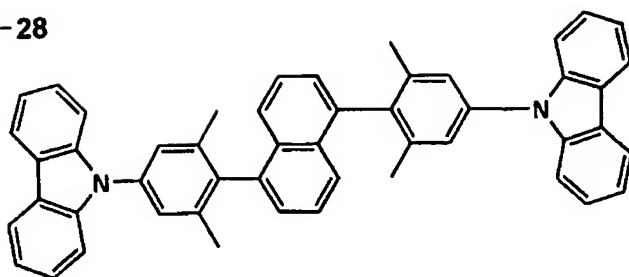
B7-27



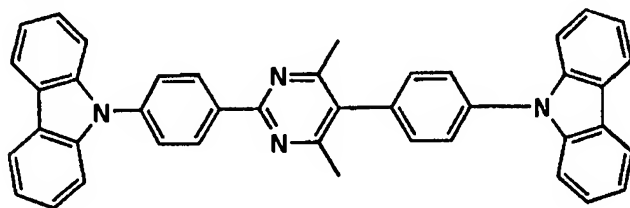
40

【 0 3 0 8 】

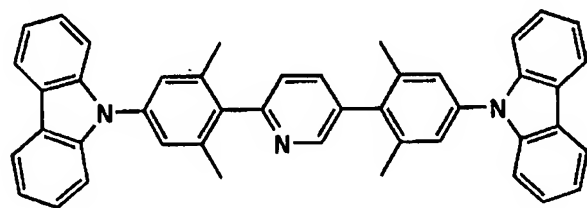
【 化 2 6 5 】

**B7-28**

10

**B7-29**

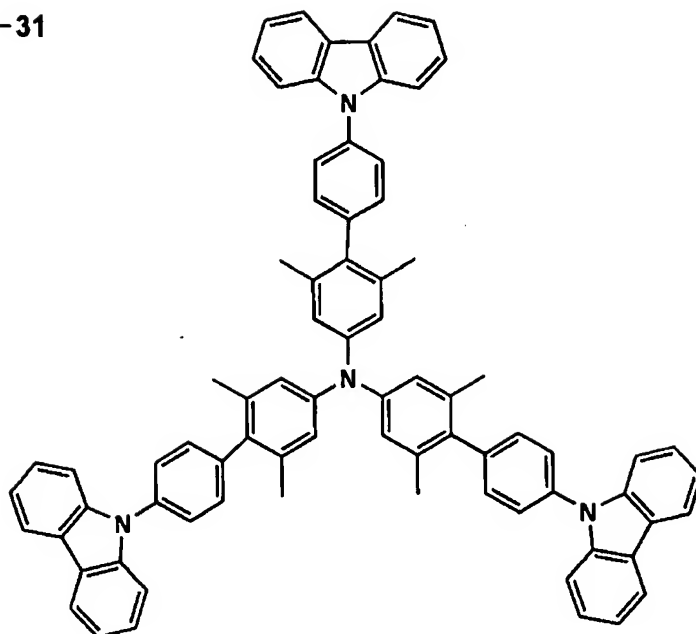
20

**B7-30**

【 0 3 0 9 】

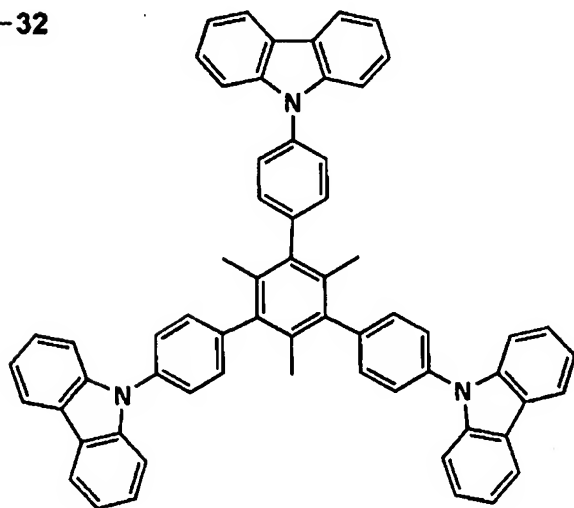
【 化 2 6 6 】

30

**B7-31**

10

20

**B7-32**

30

**【0310】**

また、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の熱安定性を向上させ、且つ、素子寿命伸長の観点から、一般式（B7-1）で表されるカルバゾール誘導体化合物の分子量は 600～2000の範囲であることが好ましく、更に好ましくは、800～2000の範囲である。

40

**【0311】**

本発明に係る一般式（B7-1）で表されるカルバゾール誘導体化合物は公知の方法によって製造が可能であるが、例えば、特開2000-21572号公報等に記載された方法を参照して合成することが出来る。

**【0312】**

以下、一般式（B8-1）で表されるカルバゾール誘導体について説明する。

**【0313】**

一般式（B8-1）において、 $R_1 \sim R_{13}$  は水素原子または一価の置換基を表し、その

50

うち、 $R_1 \sim R_8$  の少なくとも1つは一般式 (B8-1-1) に示す構造を有する。 $R_1 \sim R_{13}$  で表される一価の置換基としては、アルキル基 (メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アリール基 (フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等)、アルケニル基 (ビニル基、プロペニル基、スチリル基等)、アルキニル基 (エチニル基等)、アルキルオキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリーロキシ基 (フェノキシ基等)、アルキルチオ基 (メチルチオ基、エチルチオ基、i-プロピルチオ基等)、アリールチオ基 (フェニルチオ基等)、アミノ基、アルキルアミノ基 (ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等)、アリールアミノ基 (アニリノ基、ジフェニルアミノ基等)、ハロゲン原子 (フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基 (ピロール基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)、シリル基 (トリメチルシリル基、t-ブチルジメチルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、トリフェニルシリル基等) 等が挙げられる。それぞれの置換基はさらに置換基を有していても良い。また、置換基同士が結合し、環を形成しても良い。

#### 【0314】

一般式 (B8-1-1) において、 $Z_1$ 、 $Z_2$  は環を形成するのに必要な原子群、 $R_{21} \sim R_{24}$  は水素原子または一価の置換基を表し、 $n$  は0または1を表し、 $n$  が0のとき、 $R_{23}$  および  $R_{24}$  の少なくとも1つは一価の置換基を表し、 $n$  が1のとき、 $R_{21} \sim R_{24}$  の少なくとも1つは一価の置換基を表す。 $R_{21} \sim R_{24}$  で表される一価の置換基としては  $R_1 \sim R_{13}$  で表される一価の置換基と同様のものが挙げられる。

#### 【0315】

一般式 (B8-1) において、好ましくは  $R_1 \sim R_8$  で表される一価の置換基のうち少なくとも1つがカルバゾール骨格を有するときである。一般式 (B8-1-1) において、好ましくは、 $R_{21} \sim R_{24}$  の少なくとも1つがアルキル基である時であり、より好ましくは  $n$  が0であり、 $R_{23}$  および  $R_{24}$  が一価の置換基である時、または、 $n$  が1であり、 $R_{21} \sim R_{24}$  のうち少なくとも2つが一価の置換基である時であり、最も好ましいのは、 $n$  が1であり、 $R_{21} \sim R_{24}$  の全てが一価の置換基である時である。

#### 【0316】

以下に、具体的化合物例を示すが、本発明における化合物がこれらに限定されるものではない。

#### 【0317】

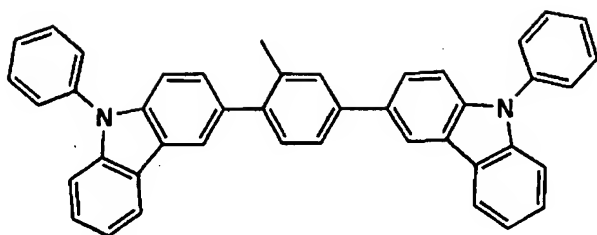
#### 【化267】

10

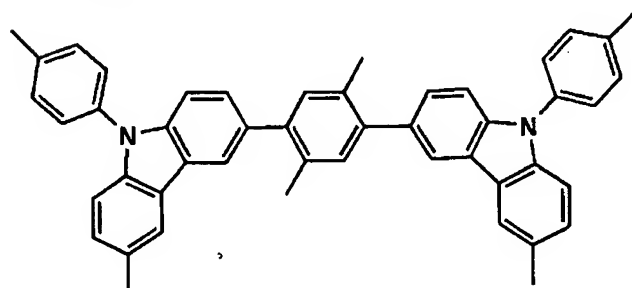
20

30

B8-1

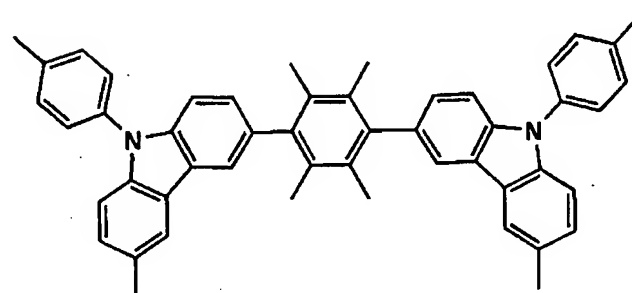


B8-2



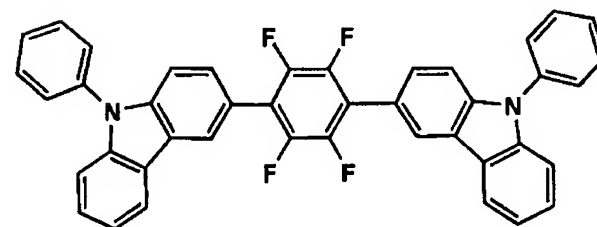
10

B8-3



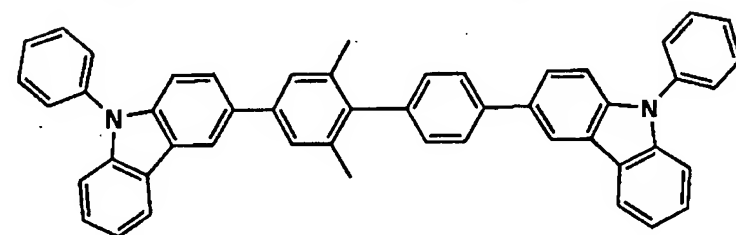
20

B8-4



30

B8-5

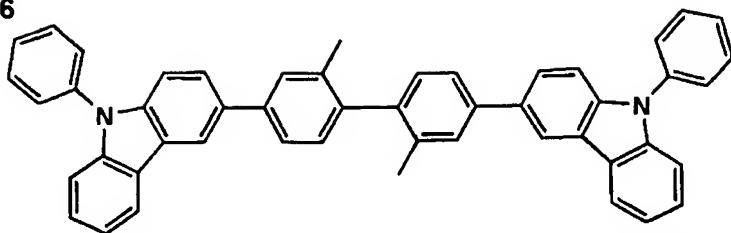


40

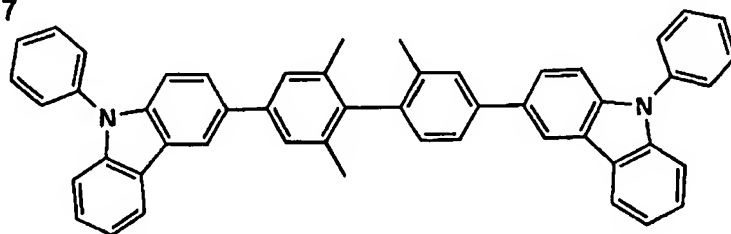
【 0 3 1 8 】

【 化 2 6 8 】

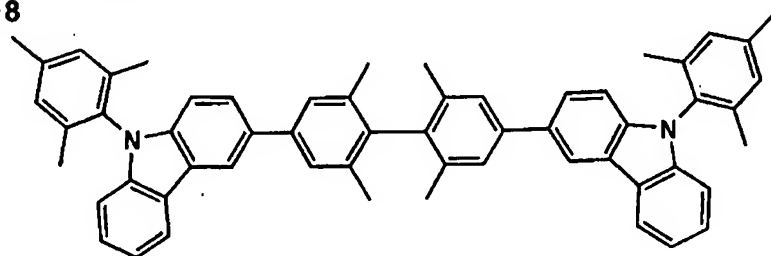
B8-6



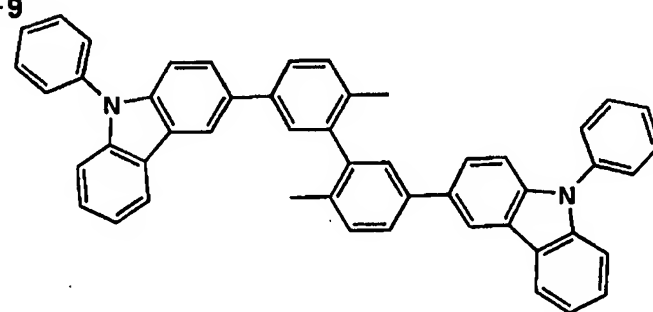
B8-7



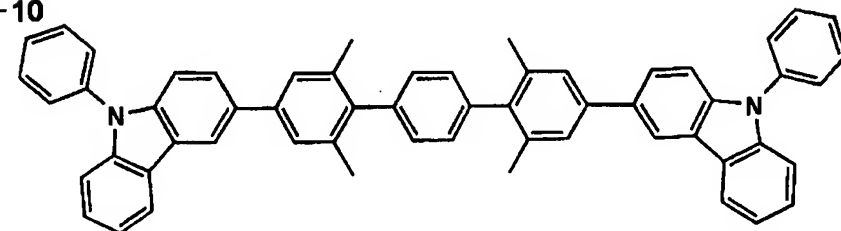
B8-8



B8-9



B8-10



10

20

30

40

【 0 3 1 9 】

【 化 2 6 9 】

11

Cc1cc(C)c(F)c(F)c1-c2ccc3c(c2)c4ccccc4n3-c5ccc6c(c5)c7ccccc7n6

12

Chemical structure 12 is a symmetrical molecule. It features a central 1,3,5-trimethylphenyl ring (a benzene ring with methyl groups at positions 1, 3, and 5). This central ring is connected at its 4-position to a para-phenylene ring. This para-phenylene ring is further connected at its other 4-position to another para-phenylene ring. Finally, this second para-phenylene ring is connected at its 4-position to an indole-3-ylphenyl group. The indole-3-ylphenyl group consists of a benzene ring connected at its 4-position to the 3-position of an indole ring. The indole ring has a nitrogen atom at position 1, which is substituted with a phenyl group. The entire molecule is symmetrical about the central 1,3,5-trimethylphenyl ring.

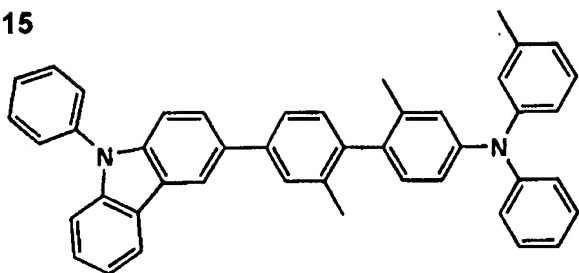
Cc1cc(C)cc(Cc2ccc(Cc3cc(C)c(C)c3N4C(=O)c5ccccc45)c6ccccc26)c1

14

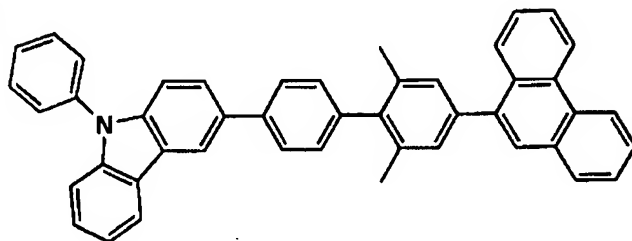
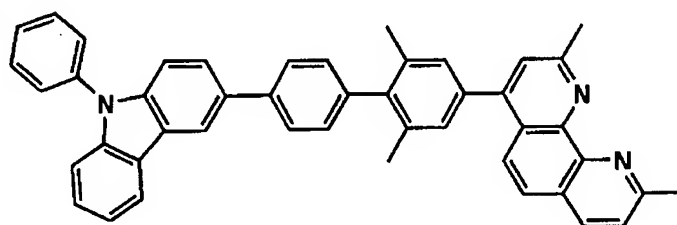
Chemical structure of compound 14: A bis-indole derivative. It consists of two 1-phenyl-1H-indol-3-yl groups connected to a central 1,4-bis(methoxy)phenylene group. The central ring has methoxy groups (OCH<sub>3</sub> and H<sub>3</sub>CO) at the 1 and 4 positions.

【化 2 7 0】

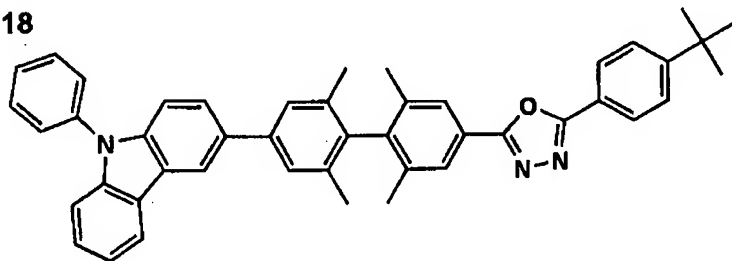
40

**B8-15**

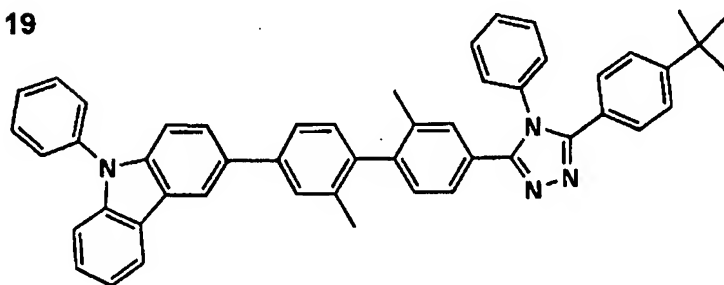
10

**B8-16****B8-17**

20

**B8-18**

30

**B8-19**

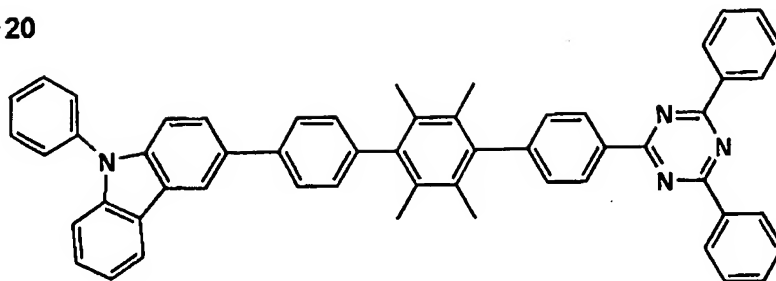
40

【 0 3 2 1 】

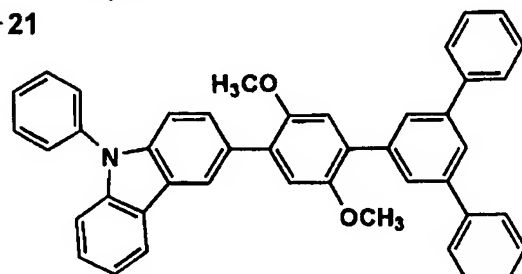
【 化 2 7 1 】



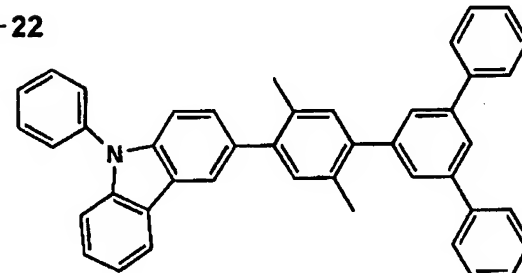
B8-20



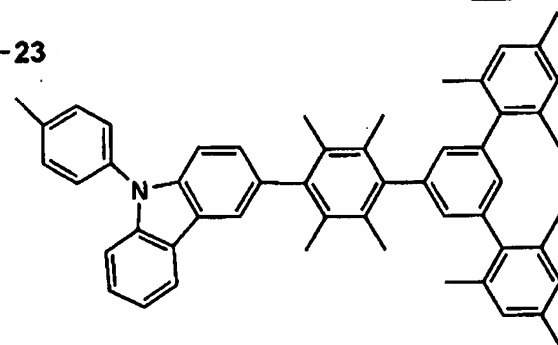
B8-21



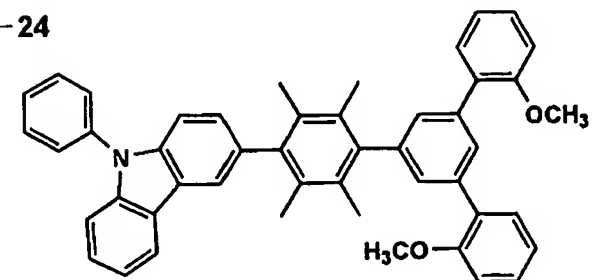
B8-22



B8-23



B8-24



10

20

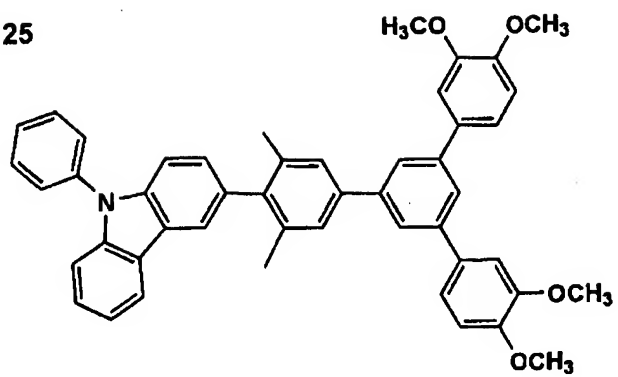
30

40

【 0 3 2 2 】

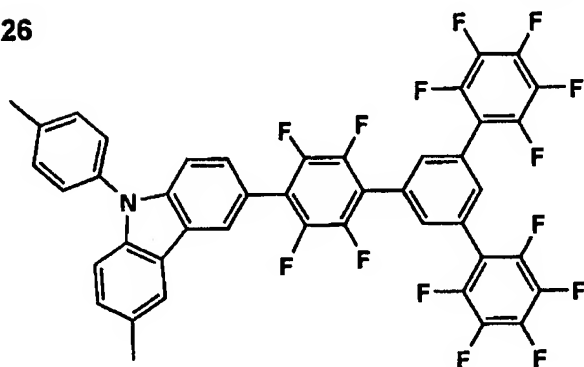
【 化 2 7 2 】

B8-25



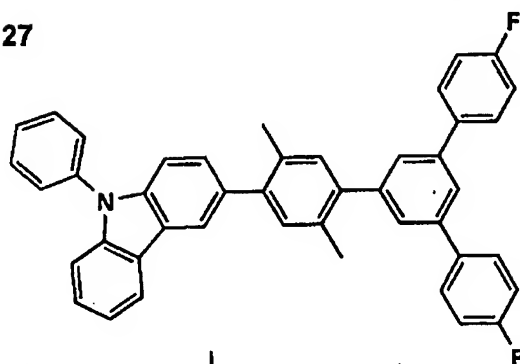
10

B8-26



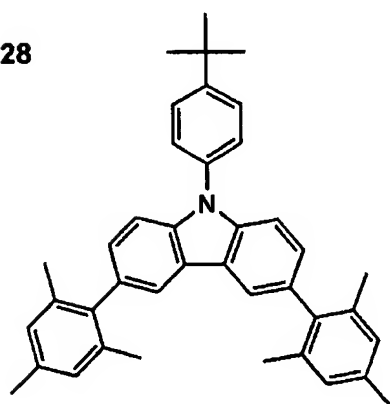
20

B8-27



30

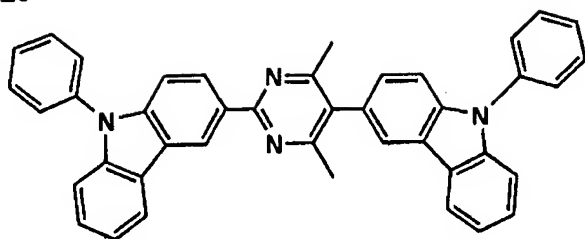
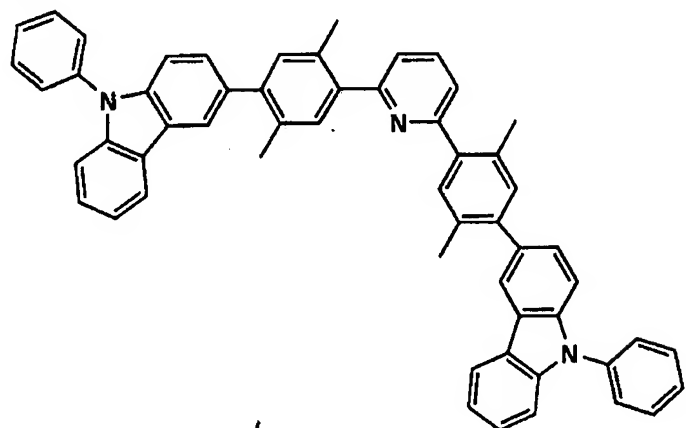
B8-28



40

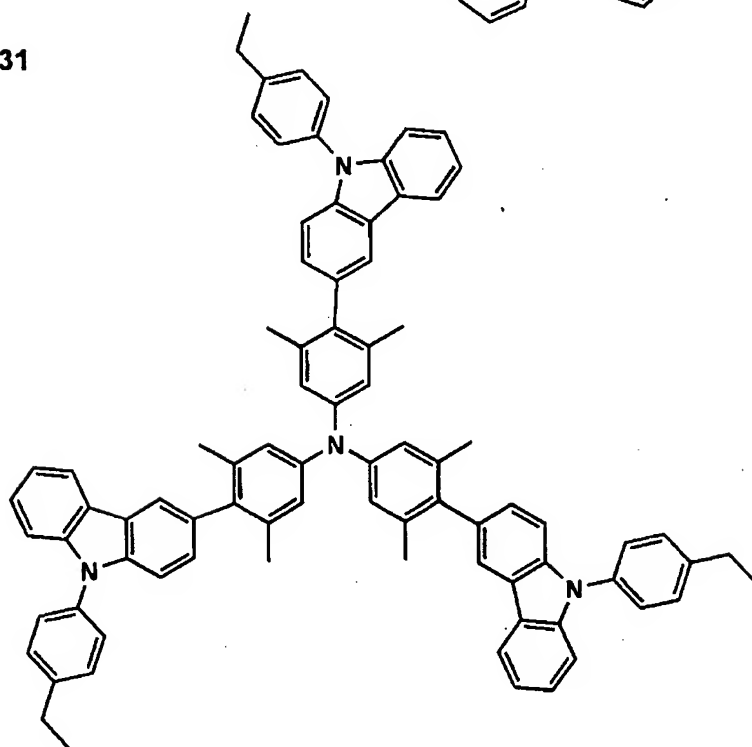
【 0 3 2 3 】

【 化 2 7 3 】

**B8-29****B8-30**

10

20

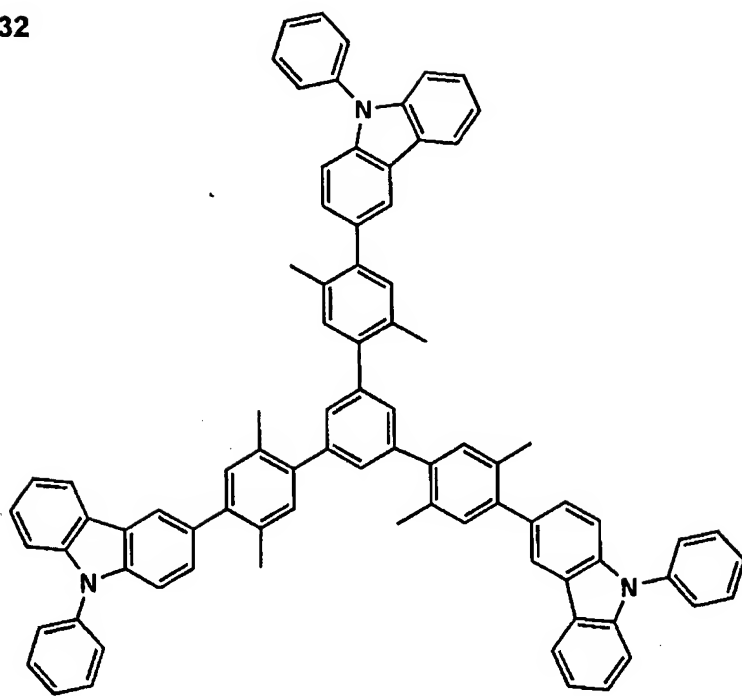
**B8-31**

30

40

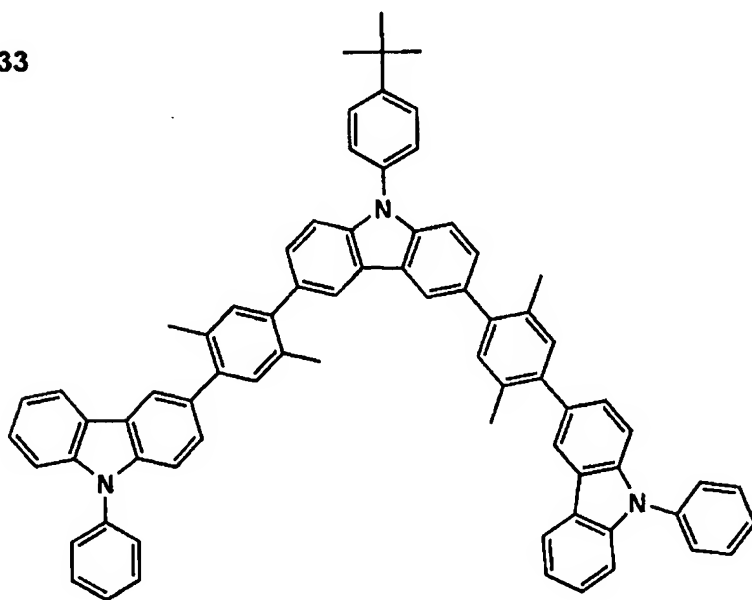
【 0 3 2 4 】

【 化 2 7 4 】

**B8-32**

10

20

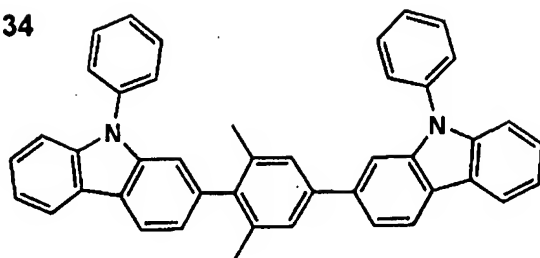
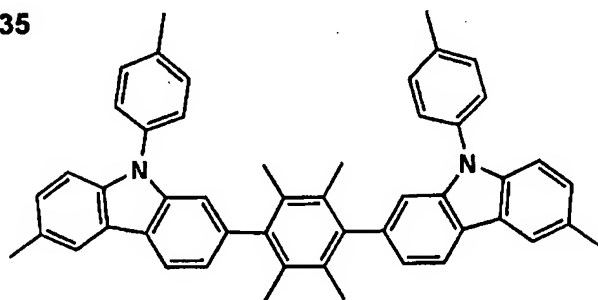
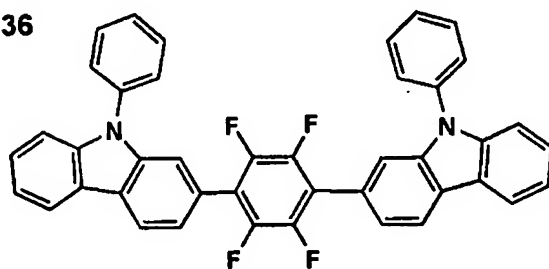
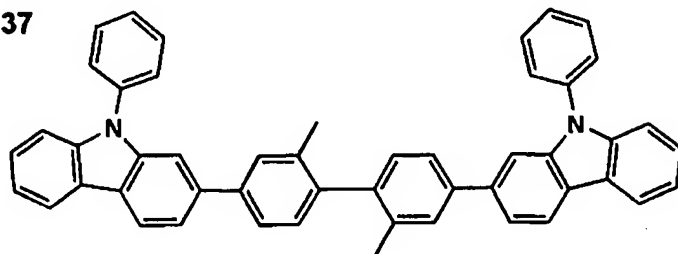
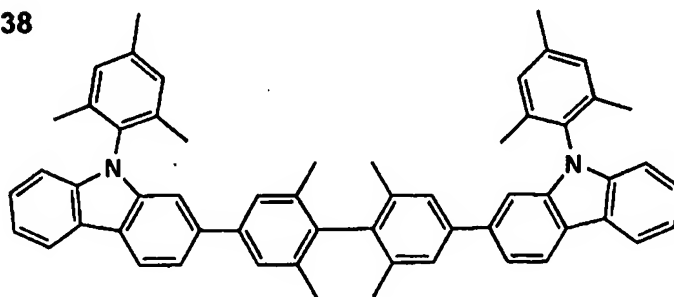
**B8-33**

30

40

【 0 3 2 5 】

【 化 2 7 5 】

**B8-34****B8-35****B8-36****B8-37****B8-38**

【 0 3 2 6 】

【 化 2 7 6 】

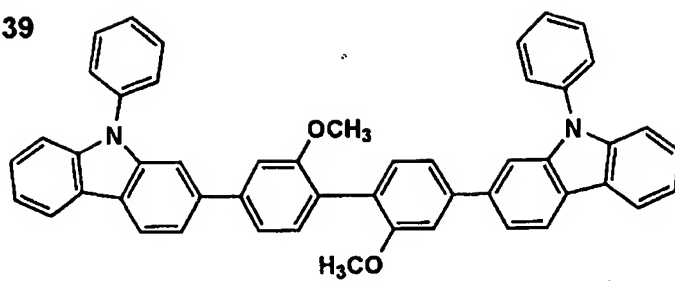
10

20

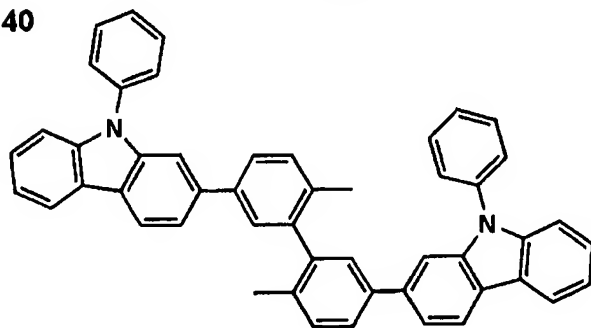
30

40

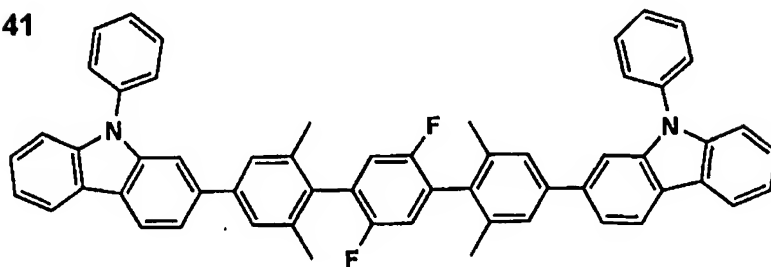
B8-39



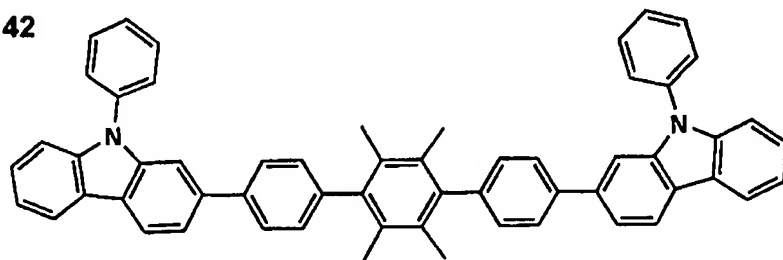
B8-40



B8-41



B8-42



【 0 3 2 7 】

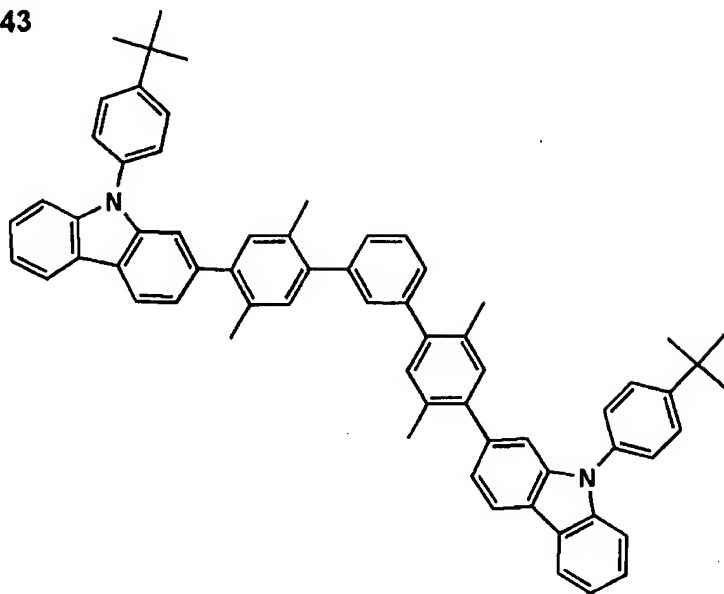
【 化 2 7 7 】

10

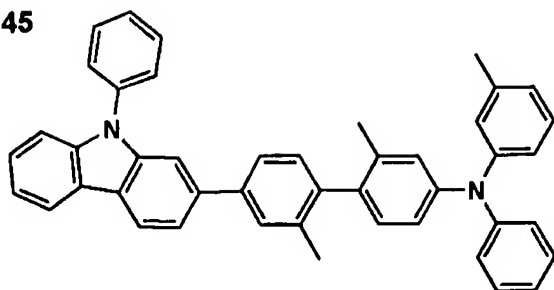
20

30

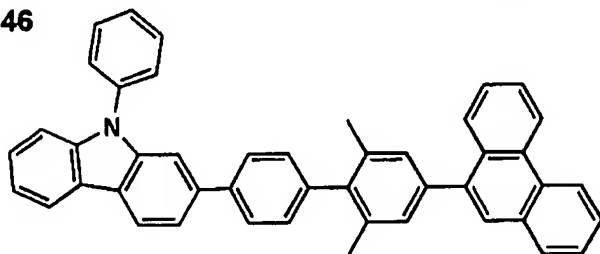
B8-43



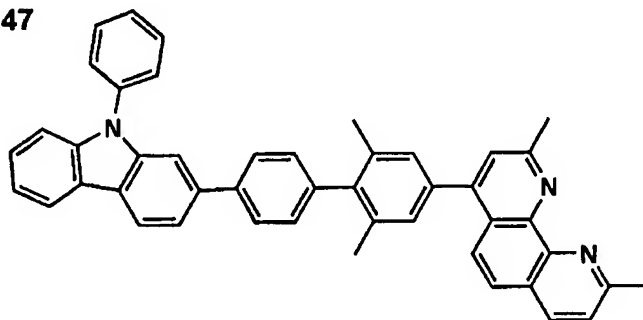
B8-45



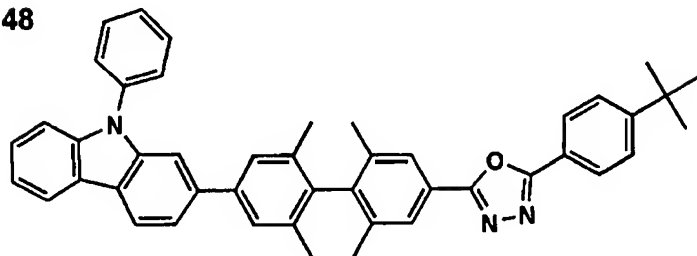
B8-46



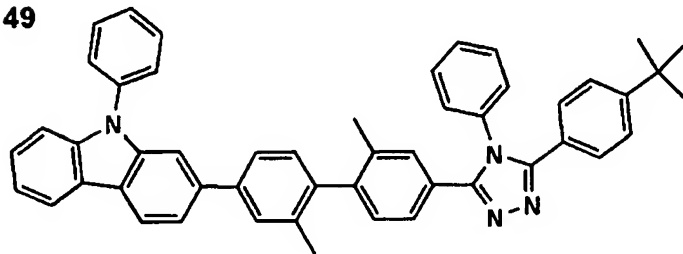
B8-47



B8-48



B8-49



10

20

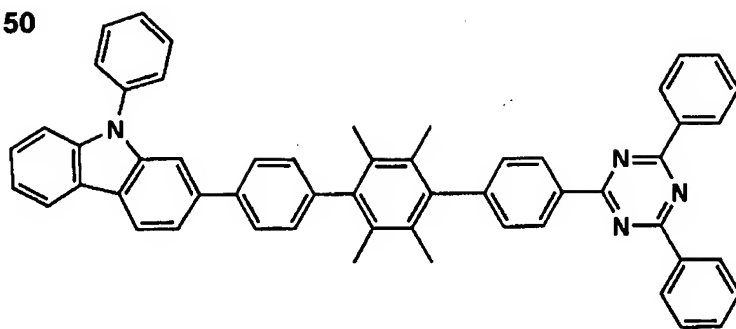
30

40

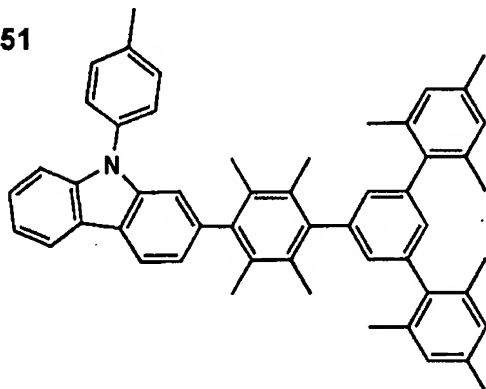
【 0 3 2 9 】

【 化 2 7 9 】

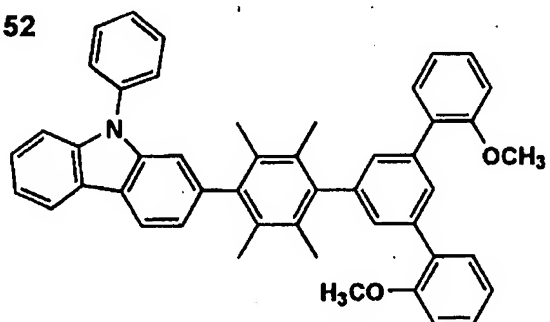


**B8-50**

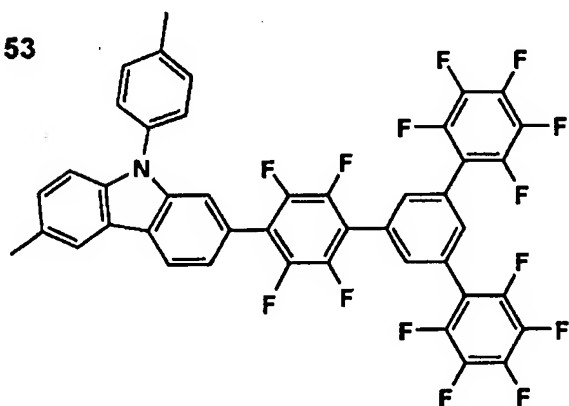
10

**B8-51**

20

**B8-52**

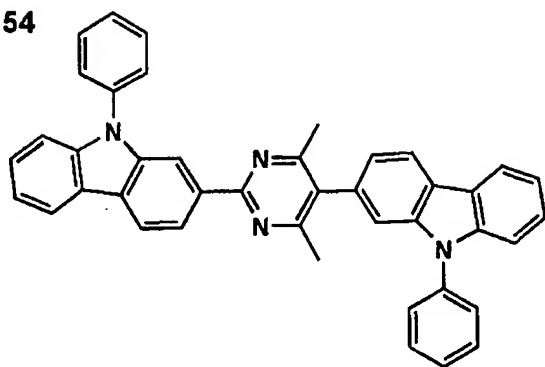
30

**B8-53**

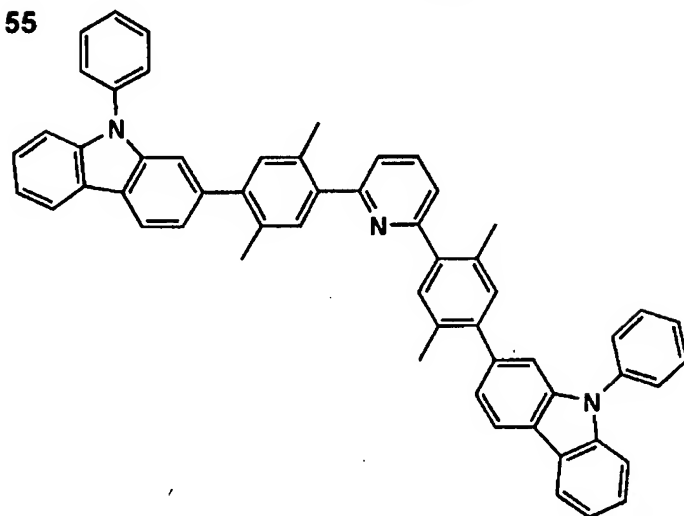
40

【 0 3 3 0 】

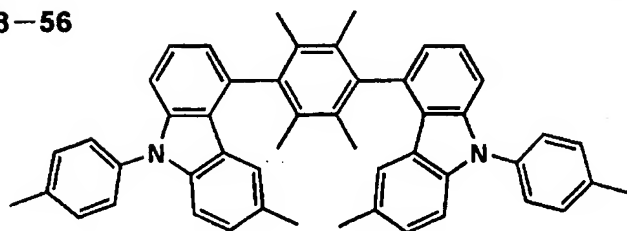
【 化 2 8 0 】

**B8-54**

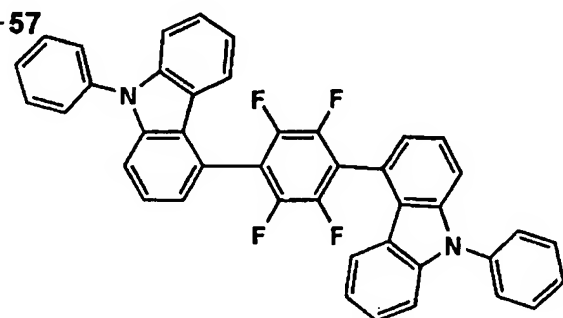
10

**B8-55**

20

**B8-56**

30

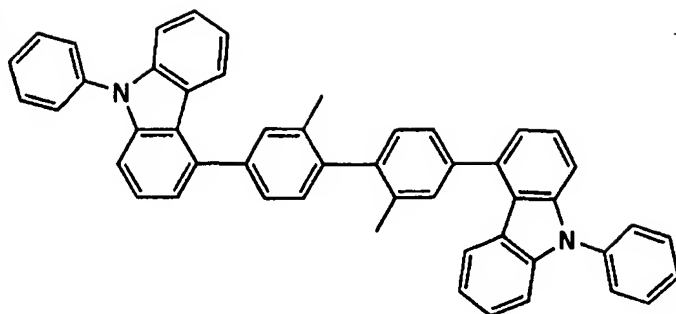
**B8-57**

40

【 0 3 3 1 】

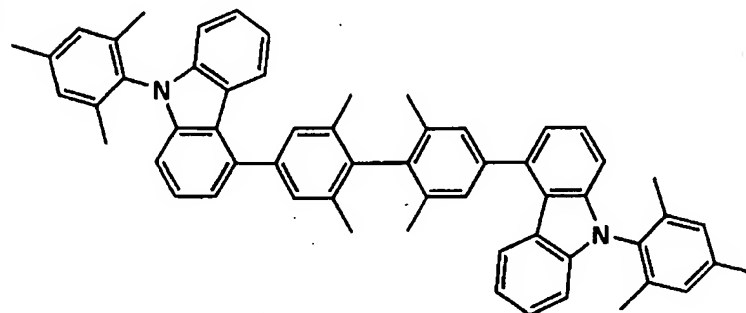
【 化 2 8 1 】

B8-58



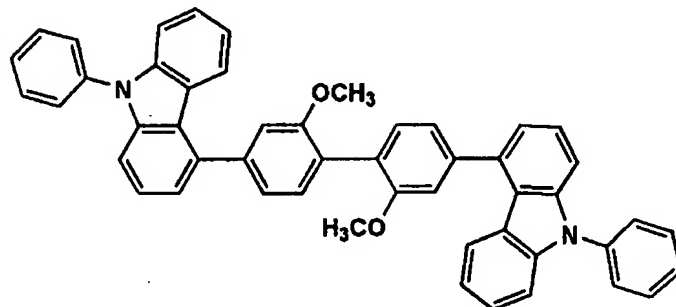
10

B8-59



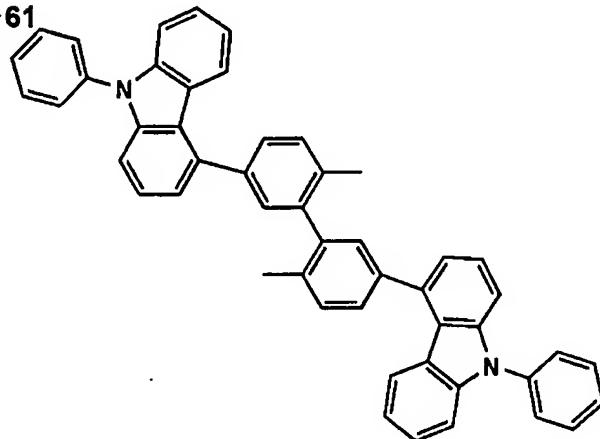
20

B8-60



30

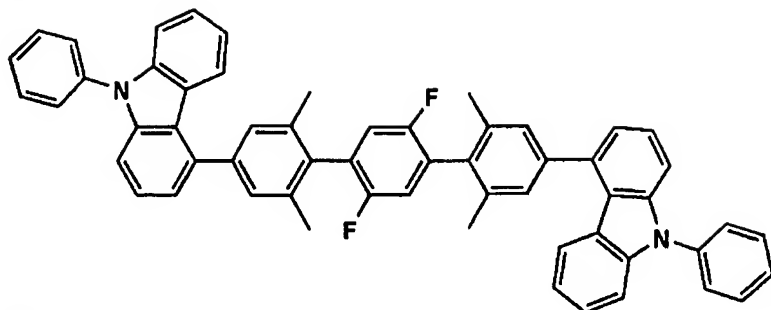
B8-61



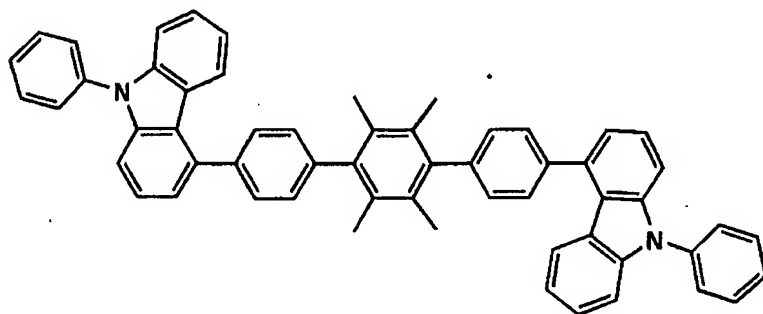
40

【 0 3 3 2 】

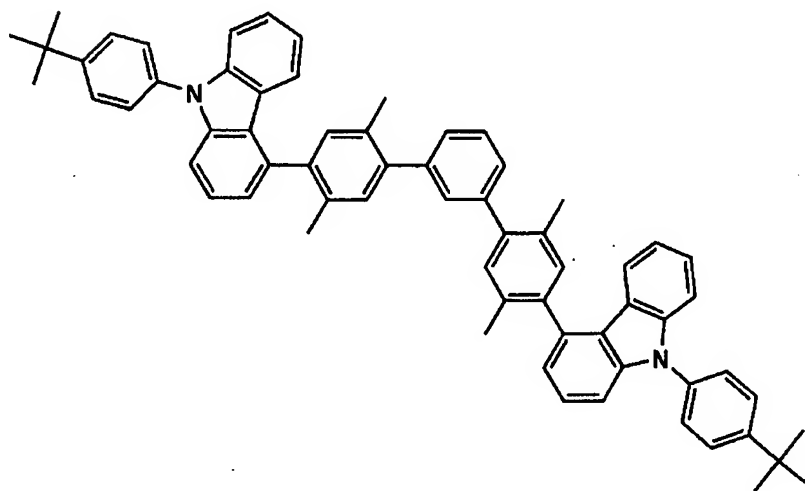
【 化 2 8 2 】

**B8-62**

10

**B8-63**

20

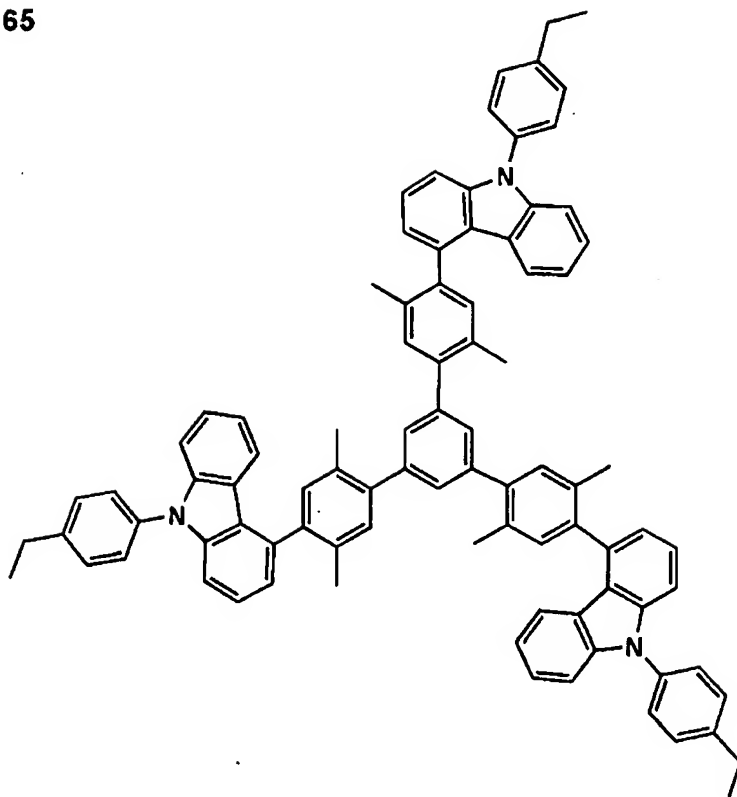
**B8-64**

30

【 0 3 3 3 】

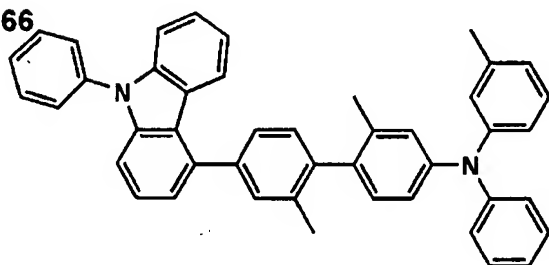
【 化 2 8 3 】

40

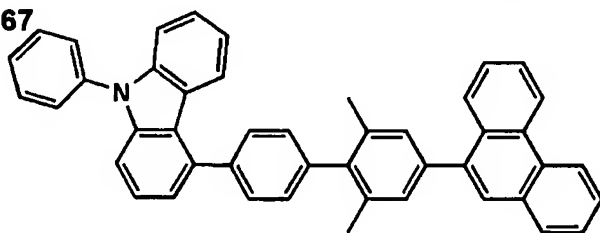
**B8-65**

10

20

**B8-66**

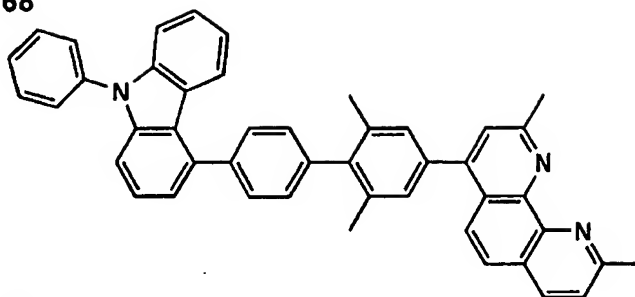
30

**B8-67**

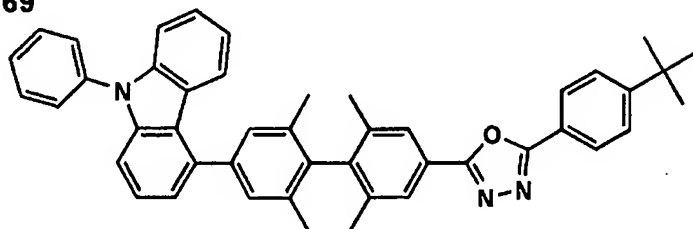
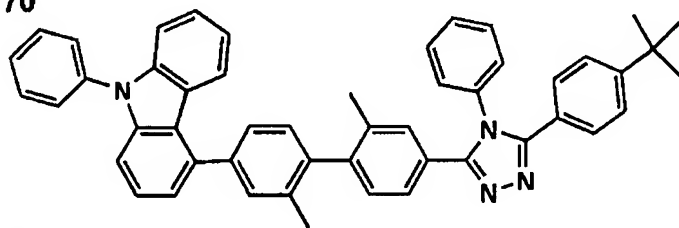
40

【 0 3 3 4 】

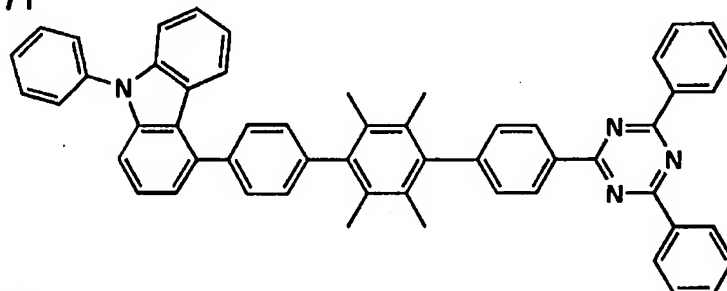
【 化 2 8 4 】

**B8-68**

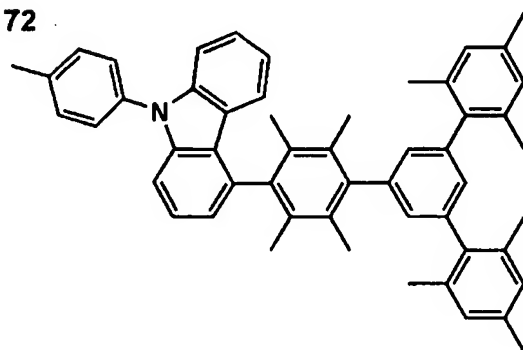
10

**B8-69****B8-70**

20

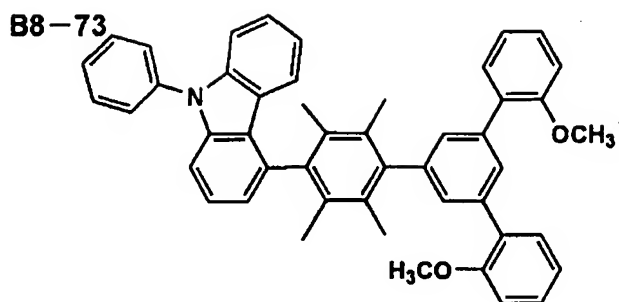
**B8-71**

30

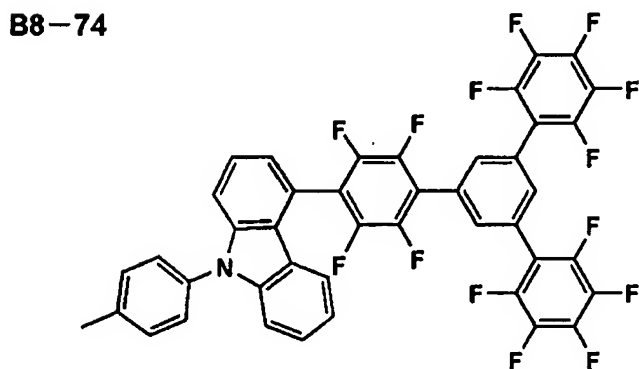
**B8-72**

40

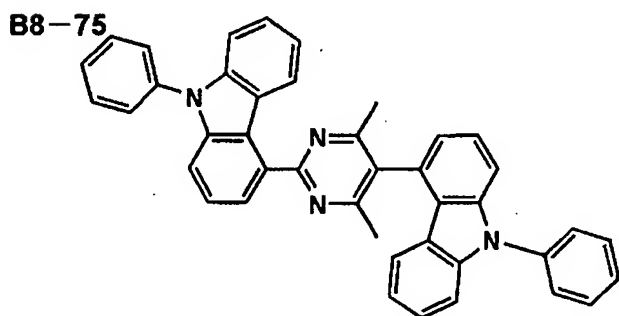
【 0 3 3 5 】  
【 化 2 8 5 】



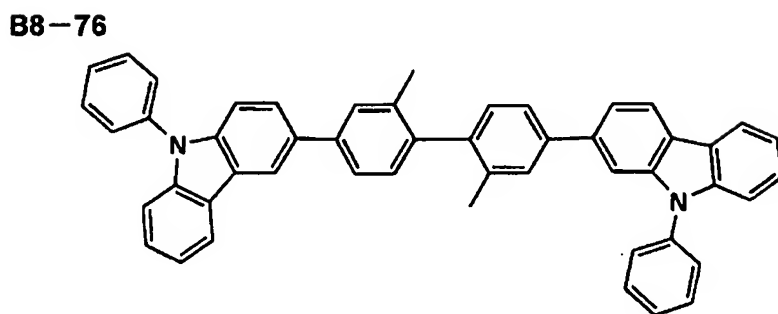
10



20



30



40

## 【0336】

又、これらの化合物の分子量は600～2000であることが好ましい。分子量が600～2000であるとT<sub>g</sub>（ガラス転移温度）が上昇し、熱安定性が向上し、素子寿命が改善される。より好ましい分子量は800～2000である。

## 【0337】

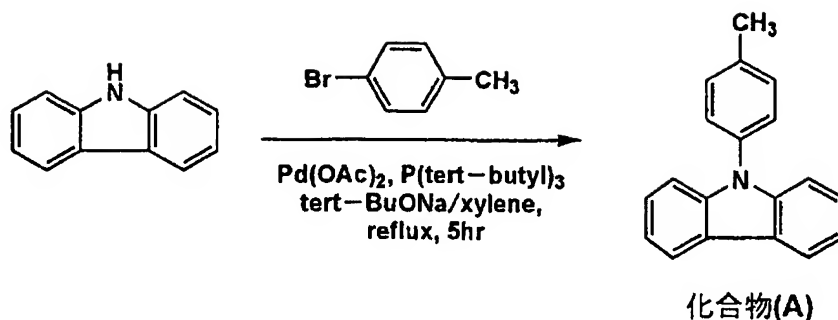
次に一般式（B8-1）で表される化合物の代表的な合成例を述べる。

合成例 化合物（B8-2）の合成

50

【0338】

【化286】



10

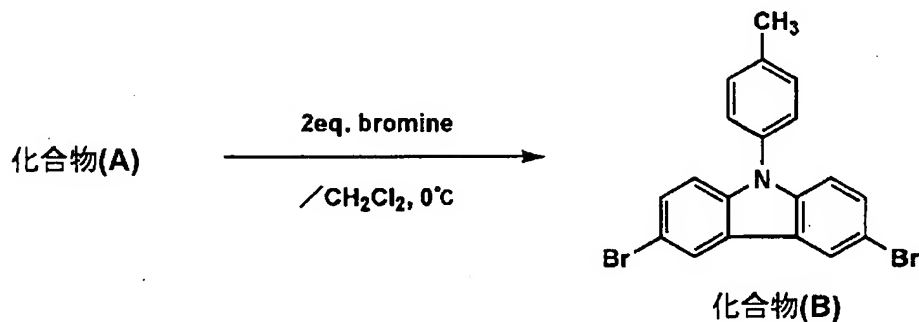
【0339】

窒素雰囲気下、酢酸パラジウム0.33gとトリ-tert-ブチルホスフィン1.4mlを脱水キシレン200mlに加えた。その後、4-ブロモトルエンを25g、カルバゾール25g、ナトリウム-tert-ブトキシド15gを添加し、6時間加熱還流した。その後、抽出処理、乾燥、濃縮、カラム精製することで、化合物(A)を28g得た。(収率75%)

20

【0340】

【化287】



30

【0341】

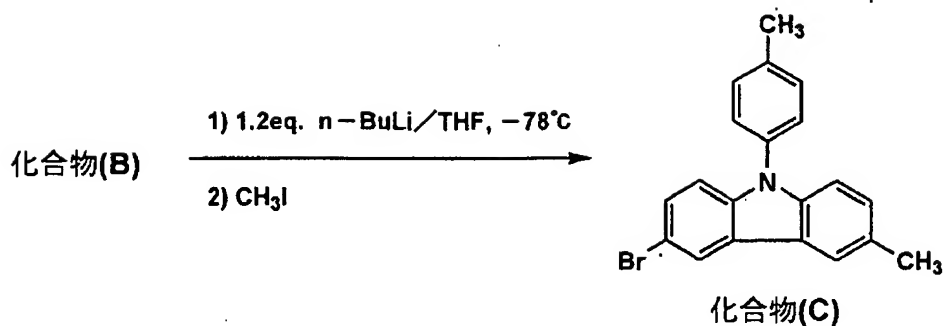
次に塩化メチレン800mlに化合物(A)25gを加え、これに0度で31gの臭素を滴下し、1時間攪拌後抽出処理、乾燥、濃縮、再結晶することで38gの化合物(B)を得た。(収率94%)

【0342】

【化288】

40





10

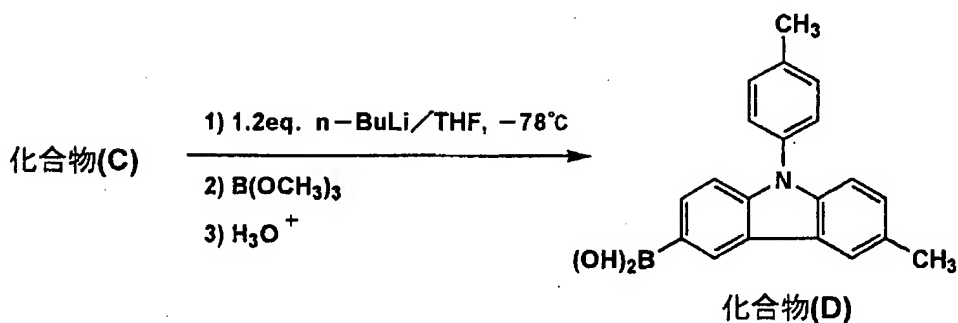
【0343】

化合物(B) 30 g を窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン 450 ml に溶解し、 $-60^\circ\text{C}$  で  $n$ -ブチルリチウム-ヘキサン (1.5 M/L) 溶液を 58 ml 滴下し、30 分攪拌後、ヨードメタン 11 ml を滴下した後、室温に戻し、抽出処理、乾燥、濃縮、再結晶することで化合物(C)を 20 g 得た。(収率 80%)

【0344】

【化289】

20



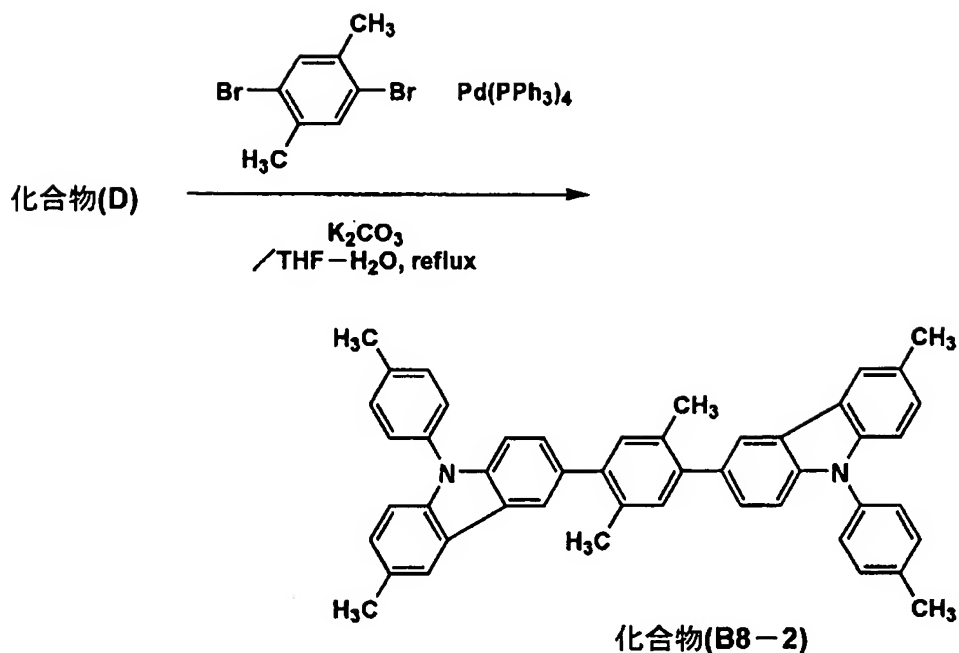
30

【0345】

化合物(C) 20 g を窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン 200 ml に溶解し、 $-78^\circ\text{C}$  で  $n$ -ブチルリチウム-ヘキサン (1.5 M/L) 溶液を 48 ml 滴下し、30 分攪拌後、トリメトキシボラン 15 ml のテトラヒドロフラン 25 ml 溶液を滴下した後、反応溶液に酸を加え、 $\text{pH} = 2$  にした。反応溶液を抽出、乾燥、濃縮して得られた化合物(D)を含む反応生成物を精製せずに次のステップに用いた。

【0346】

【化290】



10

20

## 【0347】

得られた化合物(D)を含む反応生成物と2,5-ジブロモパラキシレン6.85gをテトラヒドロフラン400mlに溶解し、炭酸カリウム15.7gをごく少量の水に溶かした溶液を加え、窒素を15分間吹き込んだ後でテトラキストリフェニルホスフィンパラジウム(0)を1.8g加え、16時間加熱還流した。反応溶液を抽出処理、乾燥、濃縮、カラム精製、昇華精製を行うことで化合物(B8-2)を4.9g得た。(収率29%) NMR及びマスペクトルにより目的物であることを確認した。その他の化合物も同様な方法或いは公知の方法によって製造が可能である。

30

## 【0348】

一般式(B9-1)で表されるカルバゾール誘導体化合物について説明する。

## 【0349】

一般式(B9-1)において、 $R_1 \sim R_8$ で各々表されるアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、*iso*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、トリフルオロメチル基、*tert*-ブチル基等が挙げられる。

## 【0350】

一般式(B9-1)において、 $R_1 \sim R_8$ で各々表されるアリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基等が挙げられる。

## 【0351】

一般式(B9-1)において、 $R_1 \sim R_8$ で各々表されるアルコキシ基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、*iso*-プロポキシ基、ブトキシ基等が挙げられる。

40

## 【0352】

一般式(B9-1)において、 $R_1 \sim R_8$ で各々表されるアリールオキシ基としては、例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等が挙げられる。

## 【0353】

一般式(B9-1)において、 $R_1 \sim R_8$ で各々表されるアルキルチオ基としては、例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、*iso*-プロピルチオ基等が挙げられる。

## 【0354】

一般式(B9-1)において、 $R_1 \sim R_8$ で各々表されるアリールチオ基としては、例え

50

ば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等が挙げられる。

【0355】

一般式 (B9-1) において、 $R_1 \sim R_8$  で各々表されるアルキルアミノ基としては、例えば、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等が挙げられる。

【0356】

一般式 (B9-1) において、 $R_1 \sim R_8$  で各々表されるアリールアミノ基としては、例えば、アニリノ基、ジフェニルアミノ基等が挙げられる。

【0357】

一般式 (B9-1) において、 $R_1 \sim R_8$  で各々表される複素環基としては、例えば、ピリジル基、チアゾリル基、オキサゾリル基、イミダゾリル基、フリル基、ピロリル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、セレナゾリル基、スルホラニル基、ピペリジニル基、ピラゾリル基、テトラゾリル基、ピロリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等が挙げられる。

10

【0358】

一般式 (B9-1) において、 $R_1 \sim R_8$  で各々表されるシリル基としては、例えば、トリメチルシリル基、tert-ブチルジメチルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、トリフェニルシリル基等が挙げられる。

【0359】

一般式 (B9-1) において、 $R_1 \sim R_8$  で各々表される上記の置換基は、更に置換基を有していても良い。

20

【0360】

本発明では、請求項2に記載のように、前記一般式 (B9-1) で表されるカルバゾール誘導体化合物において、 $R_1 \sim R_8$  で表される基の少なくとも1つの基がアリール基であることが好ましい。

【0361】

更に、本発明では、請求項4に記載のように、前記一般式 (B9-1) において、 $R_1 \sim R_8$  で表される置換基のうち少なくとも1つがカルバゾール骨格 (カルバゾール母核ともいう) を部分構造として有することが好ましい。

【0362】

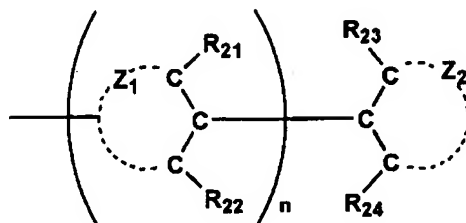
また、本発明では、前記一般式 (B9-1) で表されるカルバゾール誘導体化合物において、 $R_1 \sim R_8$  で表される基の少なくとも1つの基が、下記一般式 (B9-2) で表される部分構造を有することが好ましい。

30

【0363】

【化291】

### 一般式(B9-2)



40

【0364】

ここで、前記一般式 (B9-2) で表される部分構造について説明する。

【0365】

一般式 (B9-2) において、 $Z_1$ 、 $Z_2$  は、各々芳香族炭素環または芳香族複素環を形

50

成するのに必要な原子群を表し、 $R_{21} \sim R_{24}$  は、各々水素原子または置換基を表すが、少なくとも1つは置換基をあらわし、 $n$  は0または1を表す。

【0366】

$n$  が0のとき、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$  の少なくとも1つは置換基をあらわし、 $n$  が1のとき、 $R_{21} \sim R_{24}$  の少なくとも1つは置換基を表す。

【0367】

一般式 (B9-2) において、 $Z_1$ 、 $Z_2$  で各々形成される芳香族炭素環としては、ベンゼン環、ナフタレン環、インデン環、テトラリン環、アントラセン環、フェナントレン環等が挙げられる。

【0368】

一般式 (2) において、 $Z_1$ 、 $Z_2$  で各々形成される芳香族複素環としては、フラン環、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、1, 2, 3-オキサジアゾール環、1, 2, 3-トリアゾール環、1, 2, 4-トリアゾール環、1, 3, 4-チアジアゾール環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、s-トリアジン環、ベンゾフラン環、インドール環、ベンゾチオフェン環、ベンズイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、プリン環、キノリン環及びイソキノリン環等が挙げられる。

【0369】

本発明では、請求項9に記載のように、上記の中でも、 $Z_1$ 、 $Z_2$  が、各々ベンゼン環であることが好ましい。

【0370】

一般式 (B9-2) において、 $R_{21} \sim R_{24}$  で表される置換基としては、例えば、アルキル基 (例えば、メチル基、エチル基、i s o-プロピル基、ヒドロキシエチル基、トリフルオロメチル基、t e r t-ブチル基等)、シクロアルキル基 (例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アラルキル基 (例えば、ベンジル基等)、アルコキシアルキル基 (例えば、メトキシメチル基、メトキシエチル基、エトキシメチル基、プロポキシエチル基等)、アリール基 (例えば、フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等)、アルケニル基 (例えば、2-プロペニル基、3-ブテニル基、1-メチル-3-プロペニル基、3-ペンテニル基、1-メチル-3-ブテニル基、4-ヘキセニル基、ビニル基、スチリル基等)、アルキニル基 (エチニル基、プロパルギル基等)、アルコキシル基 (例えば、メトキシ基、エトキシ基、i s o-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基 (例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基 (例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、i s o-プロピルチオ基等)、アリールチオ基 (フェニルチオ基、ナフチルチオ基等)、アミノ基、アルキルアミノ基 (例えば、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等)、アリールアミノ基 (アニリノ基、ジフェニルアミノ基等)、ハロゲン原子 (フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基 (例えば、ピリジル基、チアゾリル基、オキサゾリル基、イミダゾリル基、フリル基、ピロリル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、セレナゾリル基、スルホラニル基、ピペリジニル基、ピラゾリル基、テトラゾリル基、ピロリジニル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)、シリル基 (例えば、トリメチルシリル基、t e r t-ブチルジメチルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、トリフェニルシリル基等) 等が挙げられる。上記の置換基は、更にさらに置換基を有していても良い。

【0371】

中でも、一般式 (B9-2) において、好ましくは、 $R_{21} \sim R_{24}$  の少なくとも1つがアルキル基である時であり、より好ましくは  $n$  が0であり、 $R_{23}$  および  $R_{24}$  が置換基である時、最も好ましいのは、 $n$  が1であり、 $R_{21} \sim R_{24}$  の全てが置換基である時である。

【0372】

ここで、 $R_{21} \sim R_{24}$  で表される置換基とは、上記一般式 (B9-1) において、 $R_1$

10

20

30

40

50

～R<sub>8</sub> で表される各基と同義である。

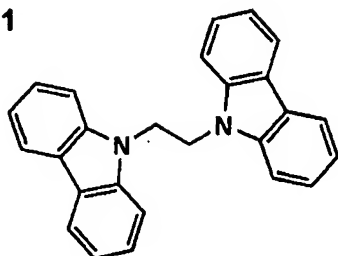
【0373】

以下に、一般式（B9-1）で表される化合物の具体的を示すが、本発明はこれらに限定されない。

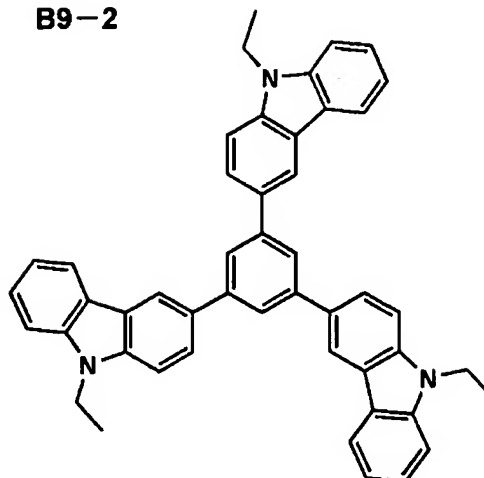
【0374】

【化292】

B9-1



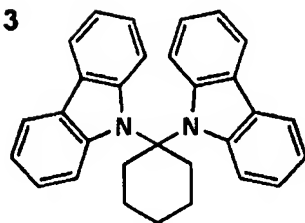
B9-2



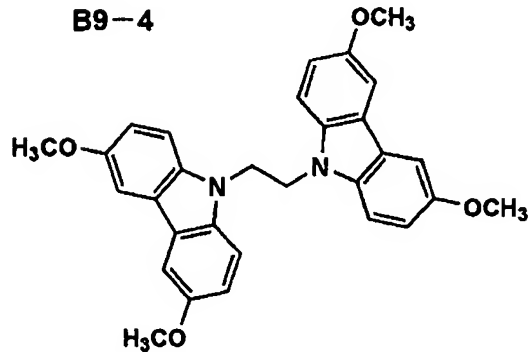
10

20

B9-3

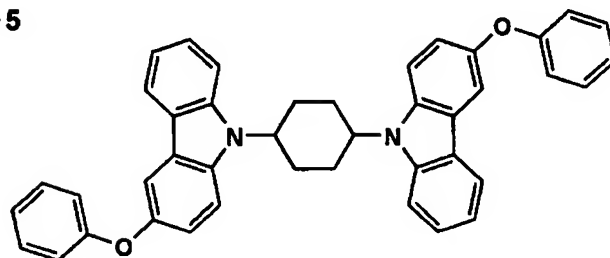


B9-4



30

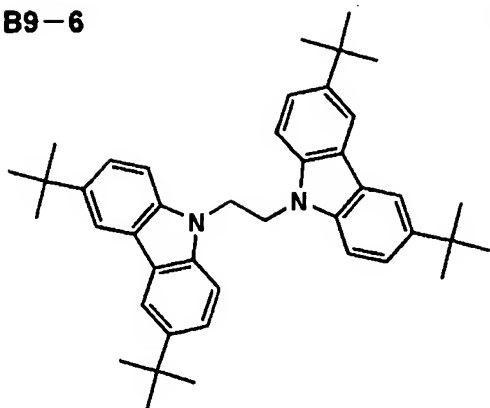
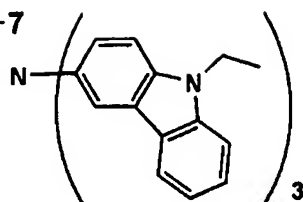
B9-5



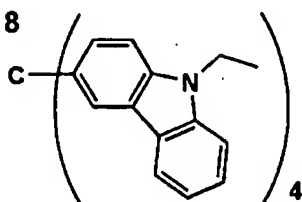
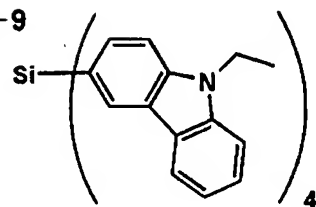
40

【0375】

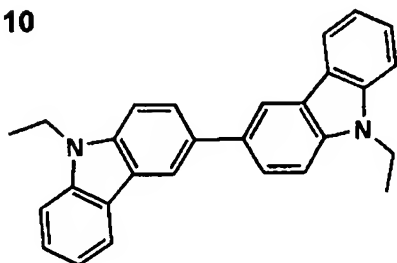
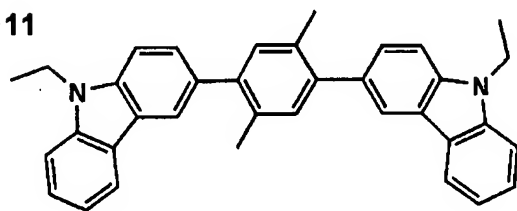
【化293】

**B9-6****B9-7**

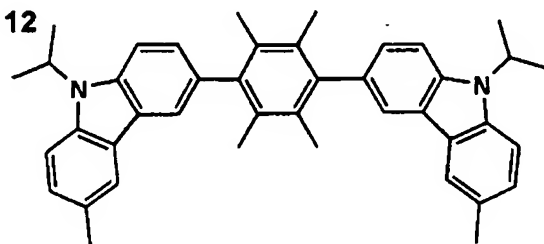
10

**B9-8****B9-9**

20

**B9-10****B9-11**

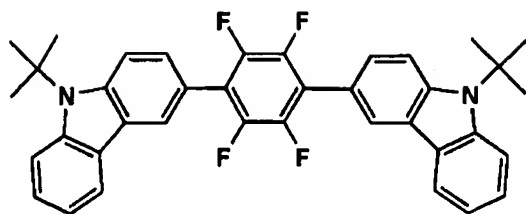
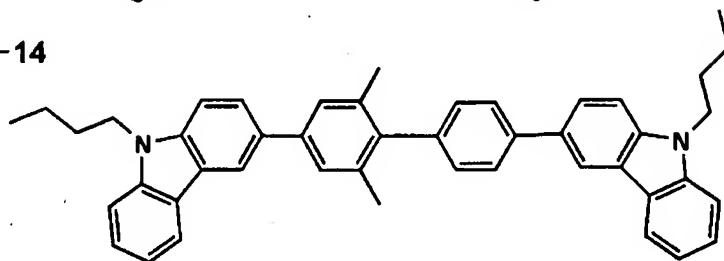
30

**B9-12**

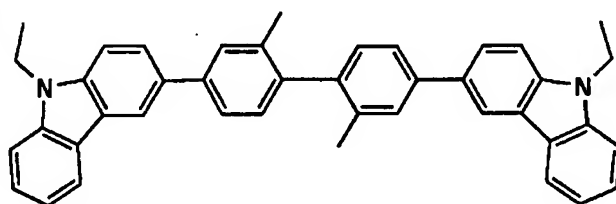
40

【 0 3 7 6 】

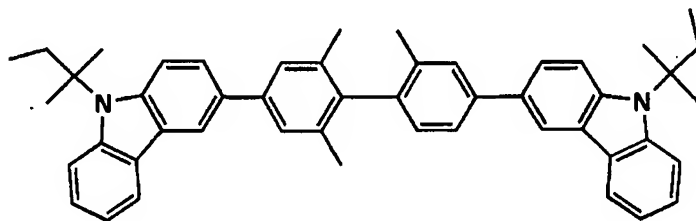
【 化 2 9 4 】

**B9-13****B9-14**

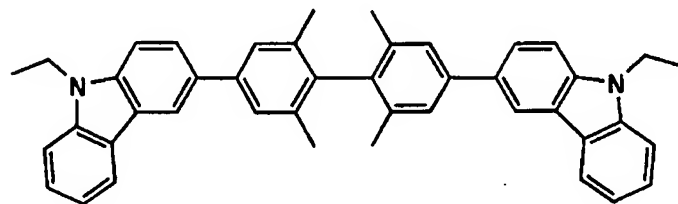
10

**B9-15**

20

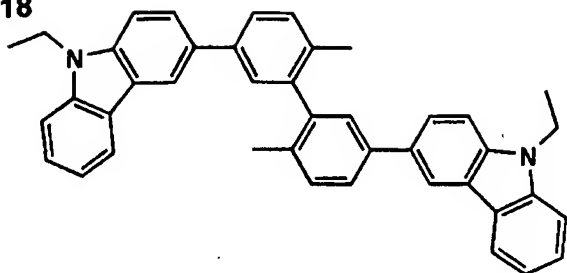
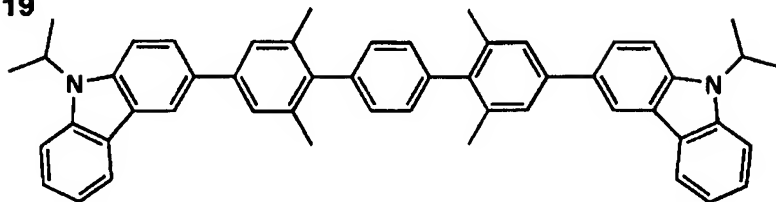
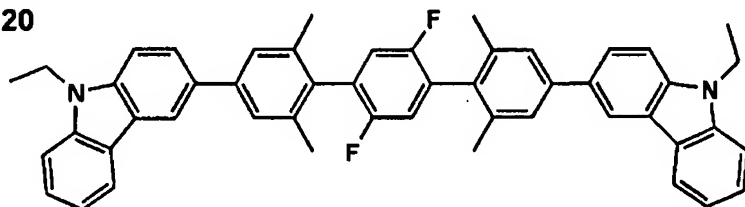
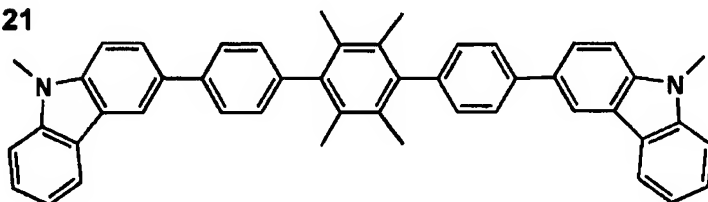
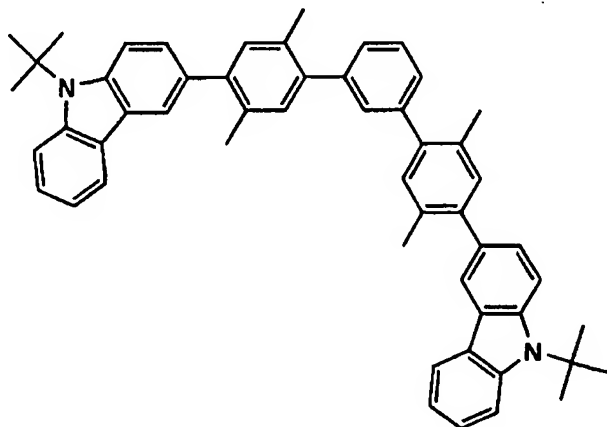
**B9-16**

30

**B9-17**

【 0 3 7 7 】  
【 化 2 9 5 】

40

**B9-18****B9-19****B9-20****B9-21****B9-22**

10

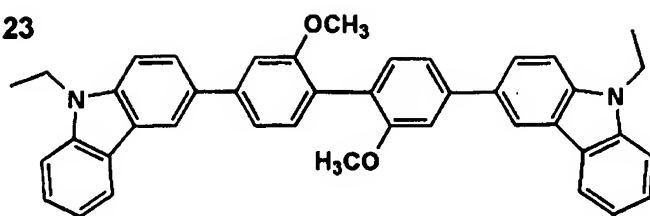
20

30

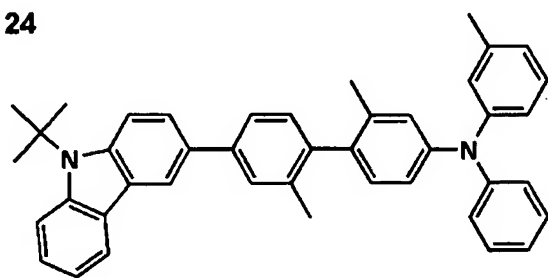
40



B9-23

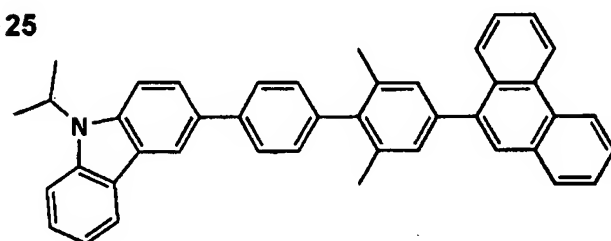


B9-24



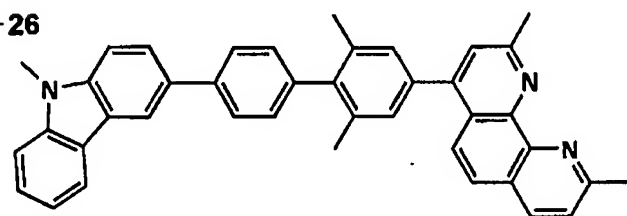
10

B9-25



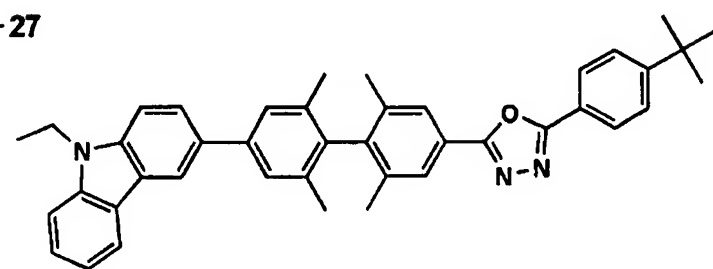
20

B9-26



30

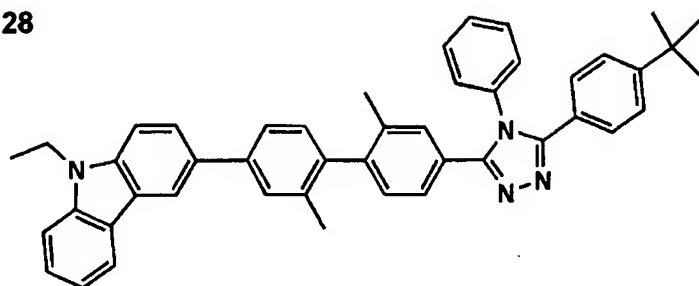
B9-27



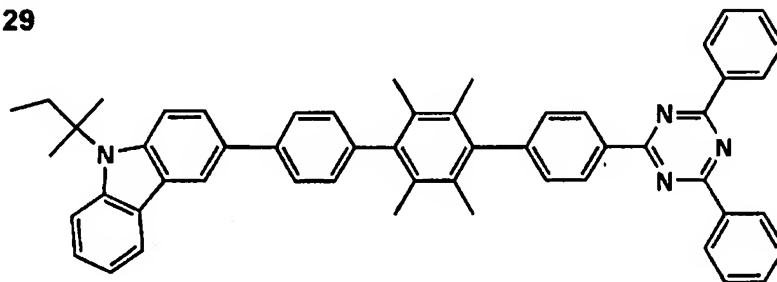
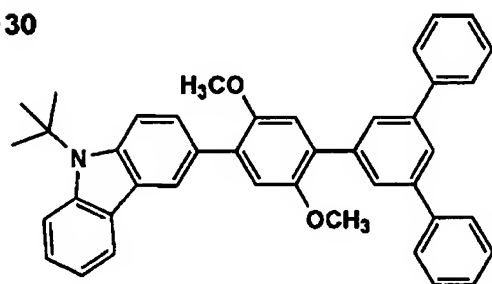
40

【 0 3 7 9 】

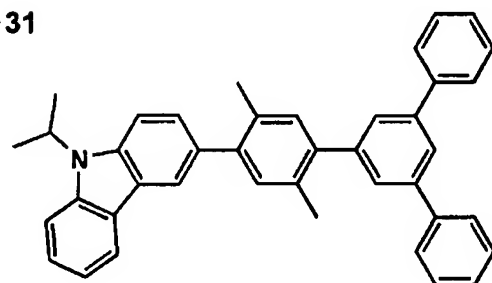
【 化 2 9 7 】

**B9-28**

10

**B9-29****B9-30**

20

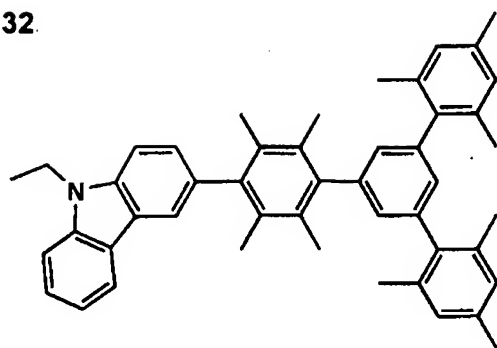
**B9-31**

30

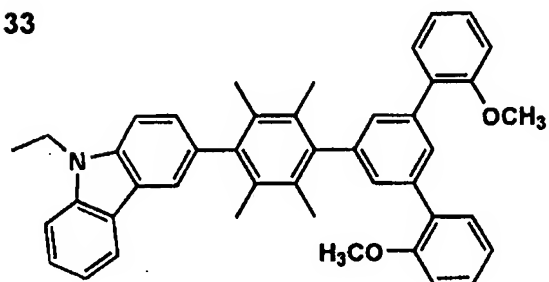
【 0 3 8 0 】

【 化 2 9 8 】

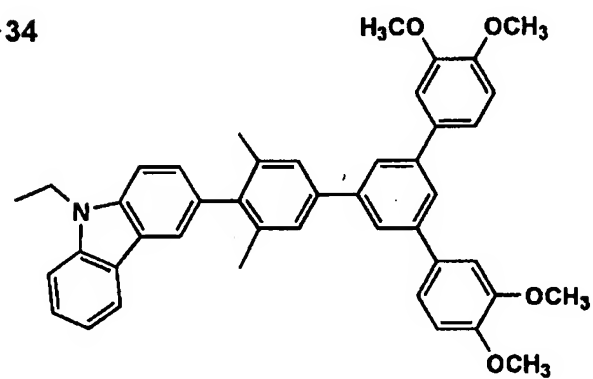
40

**B9-32**

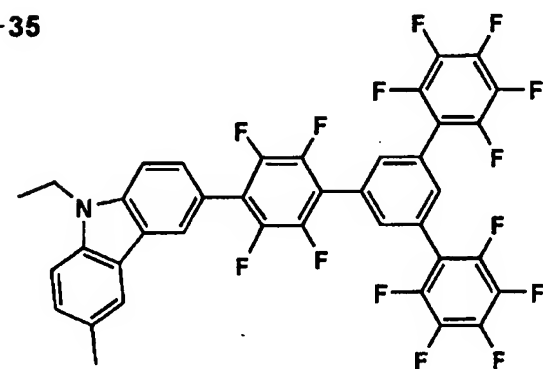
10

**B9-33**

20

**B9-34**

30

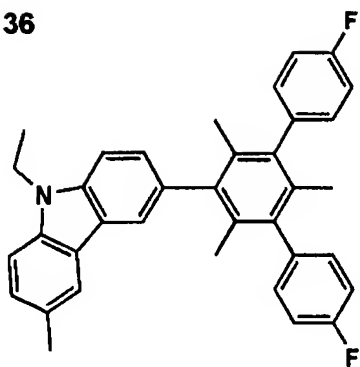
**B9-35**

40

【 0 3 8 1 】

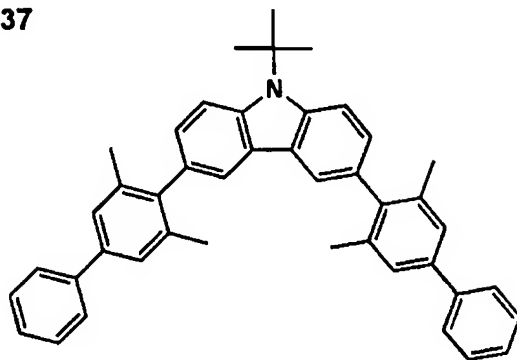
【 化 2 9 9 】

B9-36



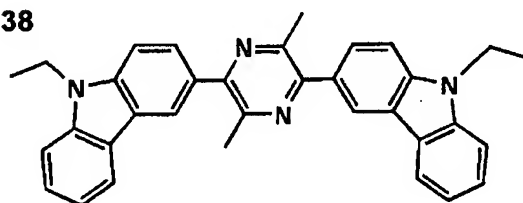
10

B9-37



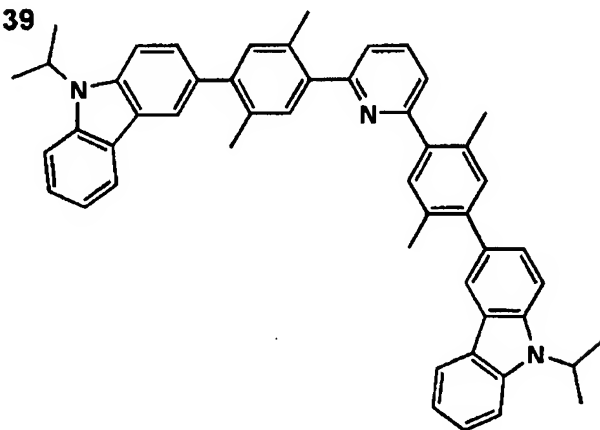
20

B9-38



30

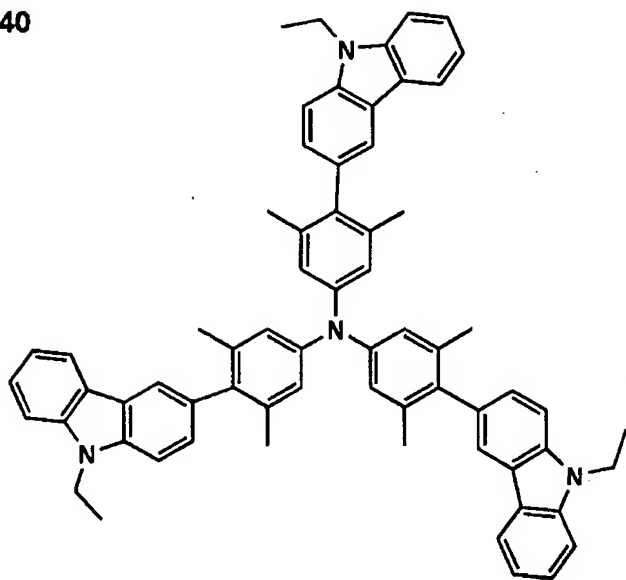
B9-39



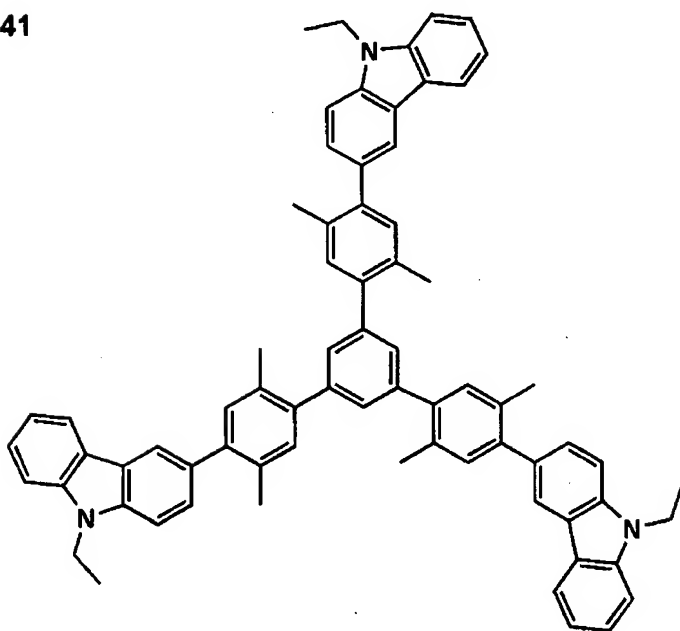
40

【 0 3 8 2 】  
【 化 3 0 0 】

10

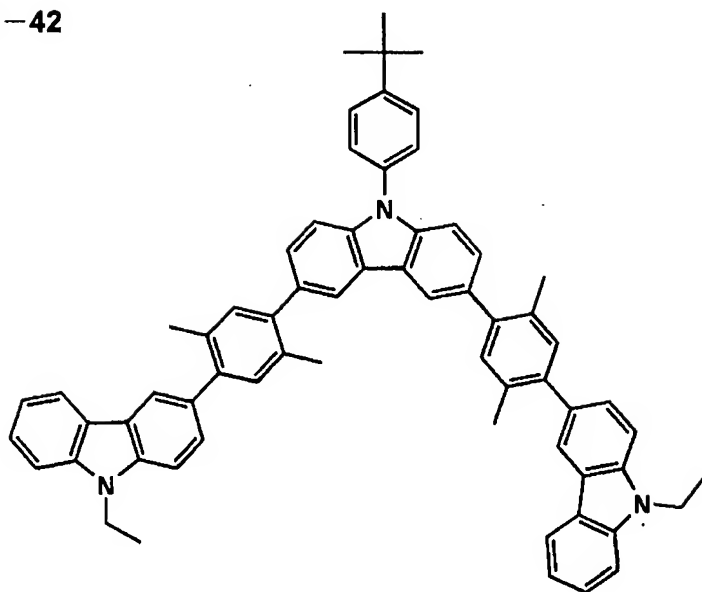


20

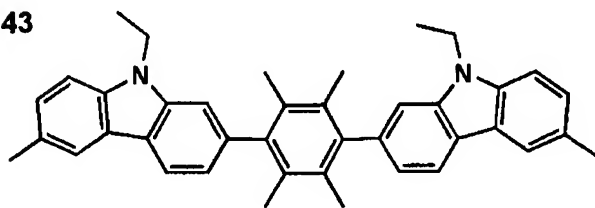


30

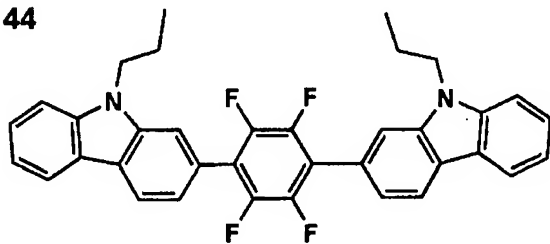
40

**B9-42**

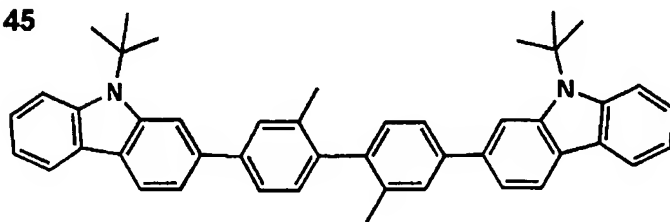
10

**B9-43**

20

**B9-44**

30

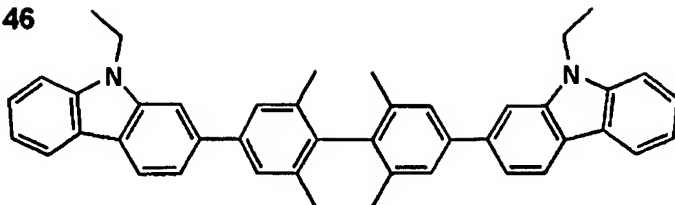
**B9-45**

40

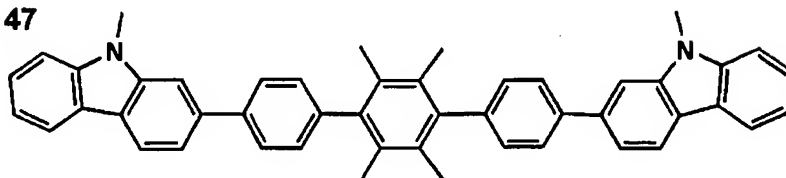
【 0 3 8 4 】

【 化 3 0 2 】

B9-46

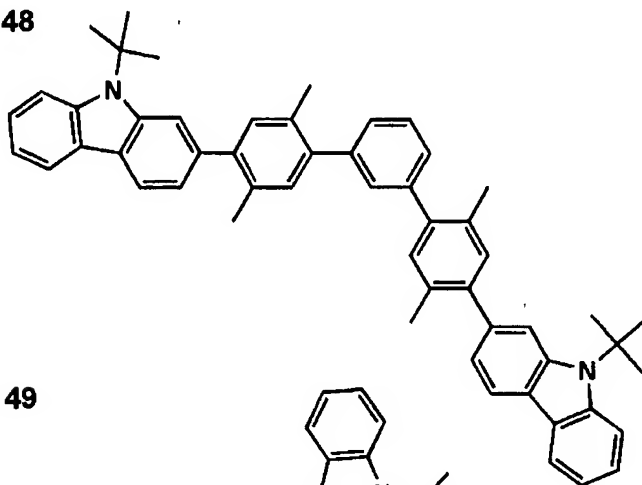


B9-47



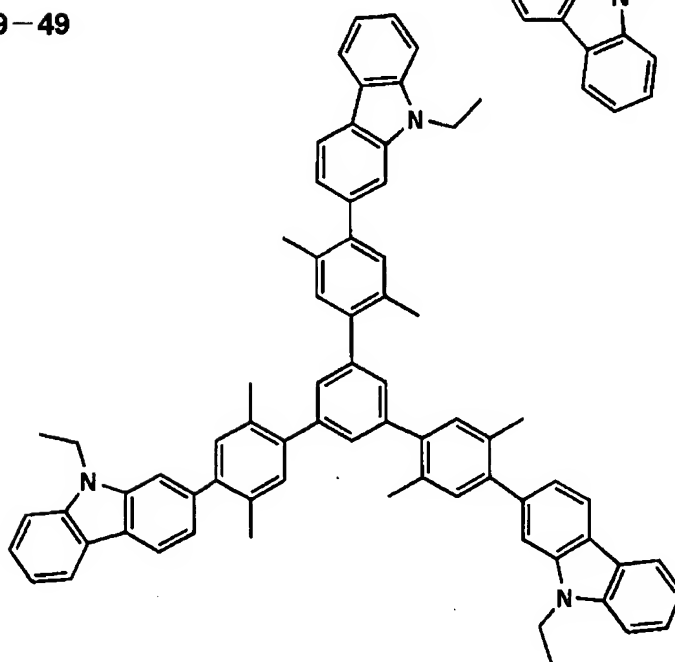
10

B9-48



20

B9-49



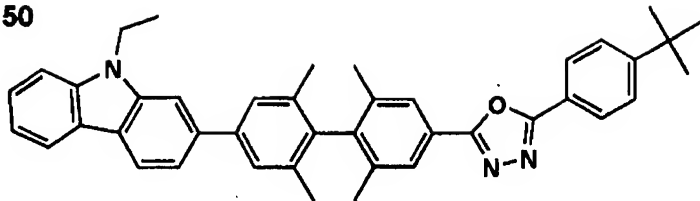
30

40

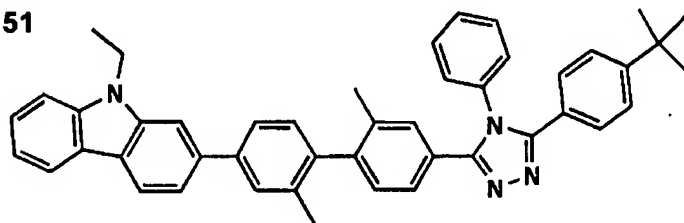
【 0 3 8 5 】

【 化 3 0 3 】

B9-50

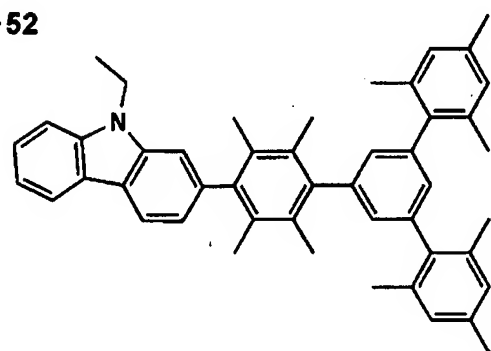


B9-51



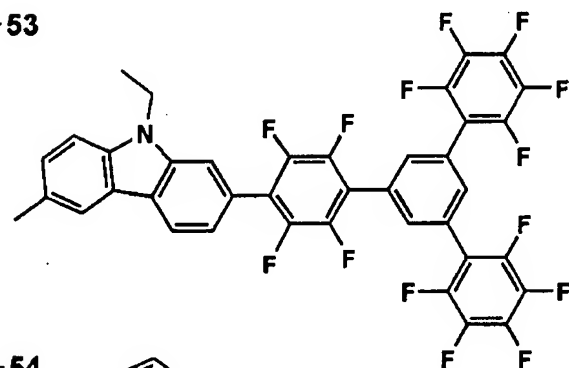
10

B9-52



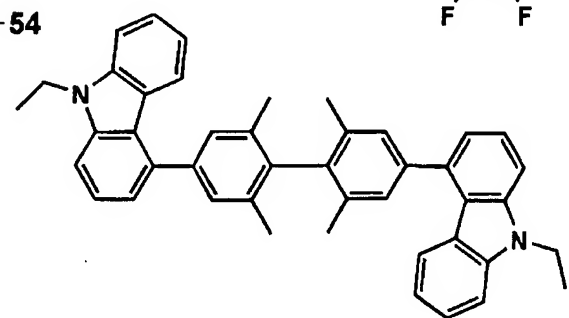
20

B9-53



30

B9-54



40

【0386】

前記一般式（B9-1）で表されるカルバゾール誘導体化合物の分子量は350～2000の範囲にあることが好ましく、更に、該素子の熱安定性を向上させ、且つ、素子寿命伸長の観点から、前記カルバゾール誘導体化合物の分子量は600～2000の範囲であることが好ましく、更に好ましくは、800～2000の範囲である。

【0387】

50



本発明に係る一般式（B9-1）で表されるカルバゾール誘導体化合物の、有機エレクトロルミネッセンス素子を構成するいずれか1層中での含有量としては、50質量%以上であることが好ましく、更に好ましくは、80質量%～95質量%であり、特に好ましくは、90質量%～95質量%である。

【0388】

本発明に係る、一般式（B9-1）で表されるカルバゾール誘導体化合物は従来公知の方法によって製造が可能であるが、例えば、下記に示すような合成例1（化合物B9-11の合成）に記載の合成方法を参照して合成出来る。

【0389】

以下、本発明に係る、一般式（1）で表されるカルバゾール誘導体化合物の合成例の一態様を示す。 10

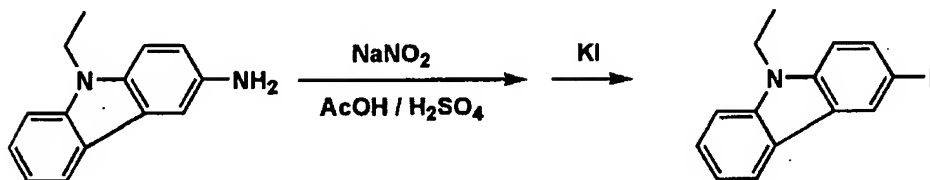
【0390】

《合成例：化合物B9-11の合成》

【0391】

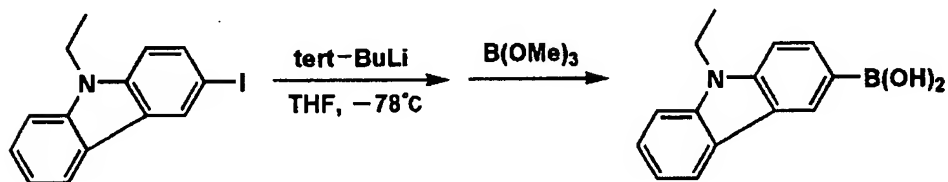
【化304】

スキーム1



20

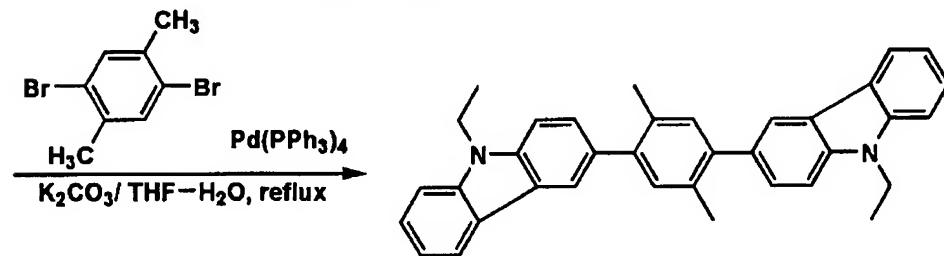
スキーム2



30

反応生成物1

スキーム3



40

化合物B9-11

【0392】

（スキーム1）：3-ヨード-9-エチルカルバゾールの合成

3-アミノ-9-エチルカルバゾール（50 g）をサンドマイヤー反応により3-ヨード-9-エチルカルバゾール（25 g）合成した。

【0393】

50

(スキーム2) : 反応生成物1の合成

3-ヨード-9-エチルカルバゾール (1.7 g) を含むテトラヒドロフラン溶液を -78℃下、n-ブチルリチウムを (3.5 ml) 滴下、攪拌し、30分後、トリメトキシボランを (1.5 ml) 滴下し、12時間攪拌した。攪拌後の溶液を抽出、濃縮して反応生成物1を得た。

【0394】

(スキーム3) : 化合物B9-11の合成

得られた反応生成物1を1,4-ジブロモ-2,5-メチルベンゼン (0.47 g)、テトラキストリフェニルフォスフィンパラジウム (0.4 g)、炭酸カリウム (1.0 g) を含むテトラヒドロフラン (300 ml)、水 (30 ml) から構成される混合溶媒に溶解させ、70℃、6時間攪拌した。

【0395】

反応溶液を抽出、乾燥、濃縮、カラム精製、昇華精製を行うことにより、化合物B9-11 (1.5 g) を得た。

【0396】

化合物B9-11の分子構造は、NMR (核磁気共鳴スペクトル) 及びマスペクトルにより目的物であることを確認した。

【0397】

一般式 (B10-1) で表される化合物について説明する。

【0398】

一般式 (B10-1) において、 $R_1 \sim R_3$  で表される置換基としては、各々、アルキル基 (メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アルキルオキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基 (フェノキシ基等)、ハロゲン原子 (フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等) を示し、また、隣接する置換基同士は互いに縮合し環を形成しても良い。

【0399】

一般式 (B10-1) において  $A_r$  は縮合芳香族基を表わすが、この場合の縮合芳香族基としては、炭化水素環系芳香族基でも複素環系芳香族基でもよく、例えば、ナフチル基、フェナンスリル基、アントリル基、ピレニル基、キノリル基、カルバゾリル基、ベンズイミダゾリル基、ピロロピラゾリル基、イミダゾピリジル基、ピラゾロトリアゾリル基等がその代表例として挙げられる。

【0400】

これらの化合物は、固体状態において強い蛍光を持つ化合物であり、電場発光性にも優れており、発光材料として有効に使用できる。また、金属電極からの優れた電子注入性及び電子輸送性に非常に優れているため、他の発光材料、または本発明の化合物を発光材料として用いた素子において、これらの化合物を電子輸送材料 (またはホールブロッカー) として使用した場合、優れた発光効率を示す。

【0401】

以下に具体的な化合物の例を挙げるが、本発明は、これらに限定されるものではない。

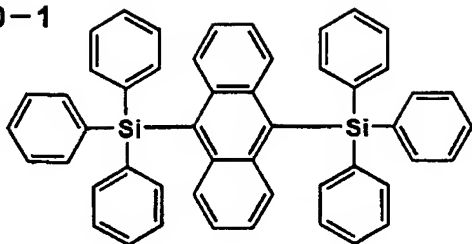
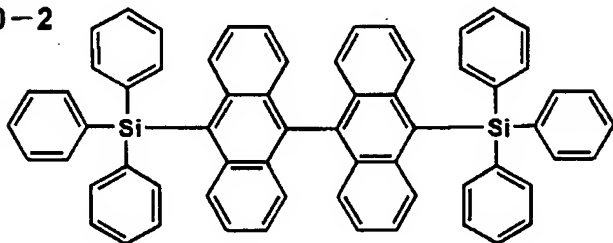
【0402】

【化305】

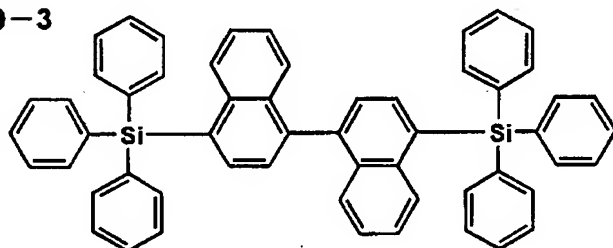
20

30

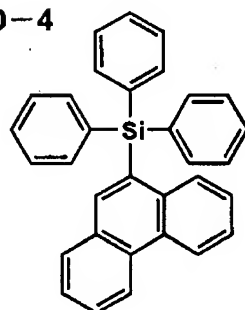
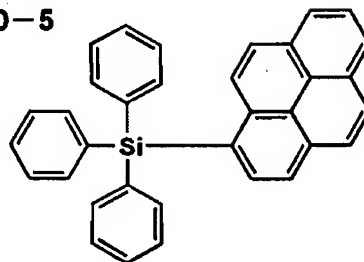
40

**B10-1****B10-2**

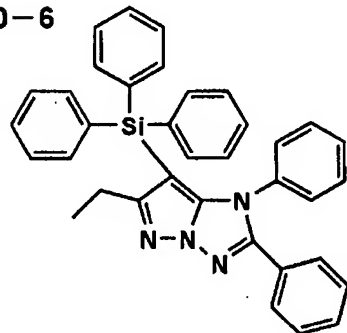
10

**B10-3**

20

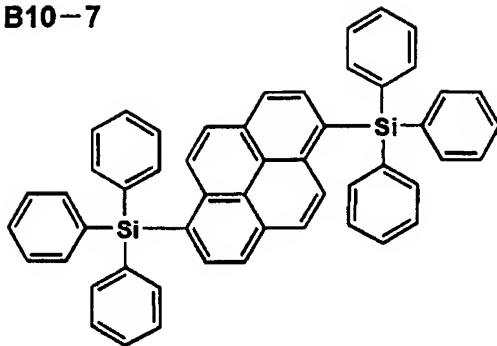
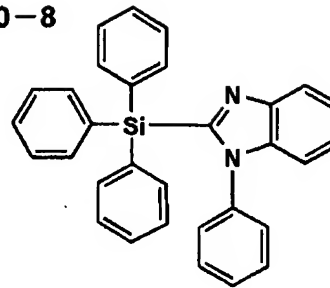
**B10-4****B10-5**

30

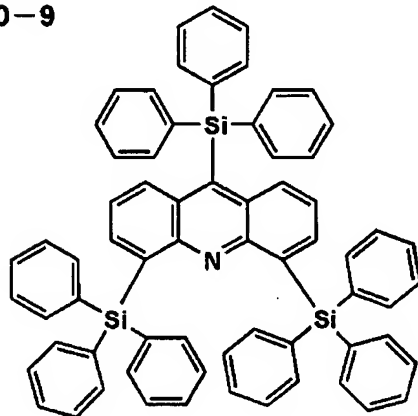
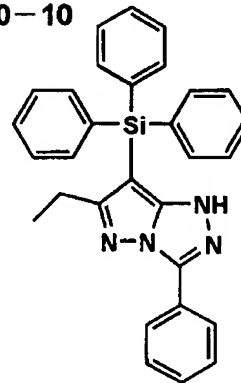
**B10-6**

40

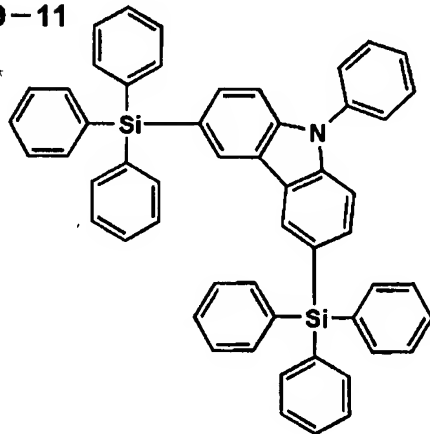
【 0 4 0 3 】  
【 化 3 0 6 】

**B10-7****B10-8**

10

**B10-9****B10-10**

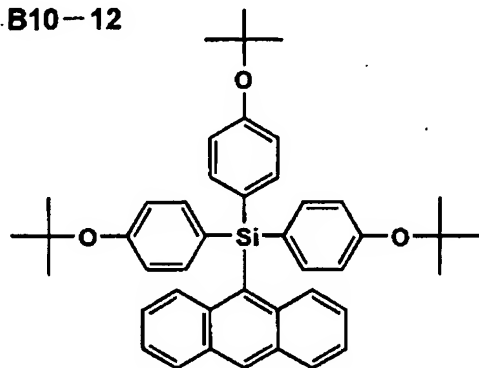
20

**B10-11**

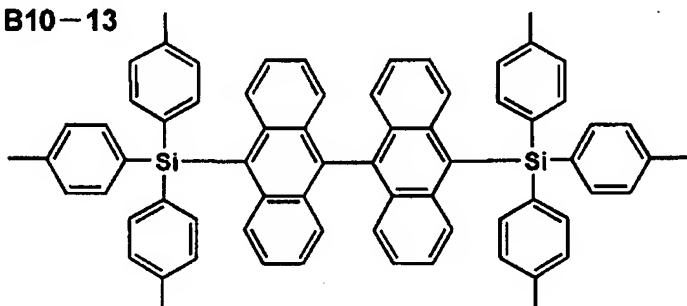
30

【 0 4 0 4 】  
【 化 3 0 7 】

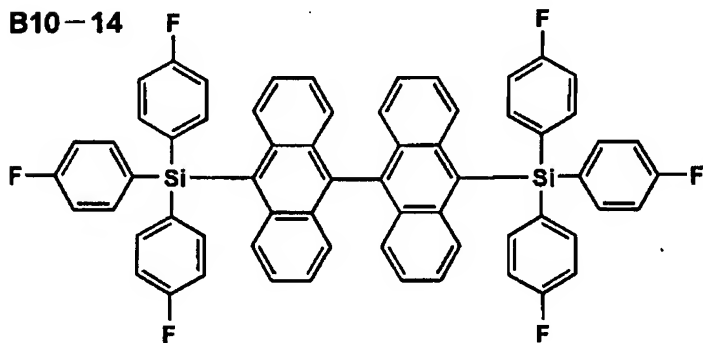
40

**B10-12**

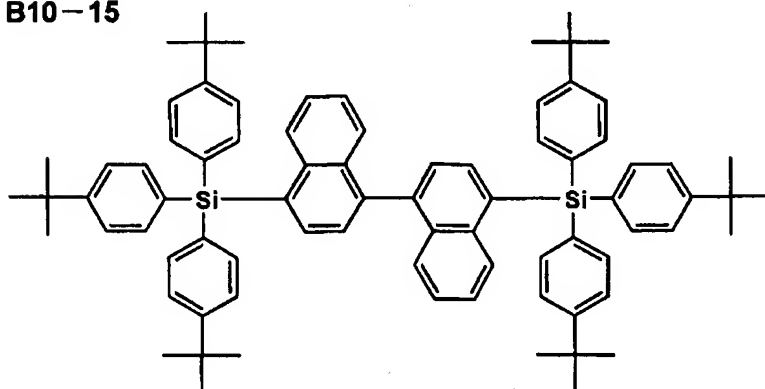
10

**B10-13**

20

**B10-14**

30

**B10-15**

40

**【0405】**

合成例 化合物 B10-1 (9, 10-ジ(トリフェニルシリル)アントラセン) の合成  
以下の反応は乾燥窒素ガス雰囲気で行った。

**【0406】**

三口フラスコに 9, 10-ジブロモアントラセン 3.36 g (10 mmol)、テトラメ  
チルエチレンジアミン 4.52 ml (30 mmol)、脱水エーテル 32 ml、脱水テト 50

ラヒドロフラン100mlを入れ、攪拌しながら $-55 \sim -50^{\circ}\text{C}$ に保った。N-ブチルリチウムヘキサン溶液(1.6M)15.5ml(25mmol)をシリンジで加えた。濃赤色の反応溶液を同温度で1時間攪拌の後、10mlの脱水テトラヒドロフランに溶かしたトリフェニルクロロシラン8.82g(30mmol)を滴下した。徐々に昇温し、室温でさらに12時間攪拌した。蒸留水を加えて反応を止めた後、蒸留水で洗浄、有機層を無水炭酸カリウムで乾燥し、濾液をロータリーエバポレーターで濃縮、減圧乾燥した。

【0407】

シリカゲルカラムクロマトグラフィー(ヘキサン:クロロホルム=1:2)でR<sub>f</sub>値約0.25の成分を分離し、ヘキサンで繰り返し再結晶した。

【0408】

収量1.74g(約25%)

$^1\text{H-NMR}$ ( $\text{CDCl}_3$ , TMS)  $\delta$  6.78(d,  $J=7.01$ , 2H, ArH), 6.79(d,  $J=6.77$ , 2H, ArH), 7.24~7.41(m, 12H, PhH), 7.63~7.66(m, 18H, PhH), 8.04(d,  $J=7.01$ , 2H, ArH), 8.05(d,  $J=6.77$ , 2H, ArH)

前記一般式(B11-1)で表される化合物について説明する。

【0409】

前記一般式(B11-1)において、RおよびR'で表される置換基としては、アルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アリアル基(フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基、ピロール基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、トリアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、チエニル基、カルバゾリル基等)、アルケニル基(ビニル基、プロペニル基、スチリル基等)、アルキニル基(エチニル基等)、アルキルオキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリアルオキシ基(フェノキシ基等)、アルキルチオ基(メチルチオ基、エチルチオ基、i-プロピルチオ基等)、アリアルチオ基(フェニルチオ基等)、アミノ基、アルキルアミノ基(ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等)、アリアルアミノ基(アニリノ基、ジフェニルアミノ基等)、ハロゲン原子(フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、シアノ基、ニトロ基、非芳香族性複素環基(ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、等)、シリル基(トリメチルシリル基、t-ブチルジメチルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、トリフェニルシリル基等)等が挙げられる。それぞれの置換基はさらに置換基を有していても良い。

【0410】

この中で好ましいものとしては、アリアル基、アルケニル基、アルキニル基が挙げられる。nは0~4の整数を表し、mは0~4の整数を表し、nが2以上の整数を表す場合、複数のRは互いに縮合して環を形成してもよく、mが2以上の整数を表す場合、複数のR'は互いに縮合して環を形成してもよい。

【0411】

L1およびL2で表される2価の連結基としてはアルキレン、アルケニレン等の非芳香族系の2価の連結基、或いは、芳香族系の2価の連結基を表す。非芳香族系の2価の連結基、例えばアルキレン、アルケニレン等の基のうち好ましくはアルキレン基であるが、これらは置換されていてもよく、置換基としては前記R、R'等で挙げられた基が挙げられるが、好ましくはメチレン、エチレン等の無置換のアルキレン基である。又、これら非芳香族系の置換基、例えばアルキレン等の基は、骨格となる炭素原子が構成するメチレン或いは置換メチレン等の基が酸素原子、硫黄原子或いは窒素原子等のヘテロ原子で置換されたエーテル、チオエーテル、又イミノ構造を有するものであってもよい。

【0412】

又、芳香族系の2価の置換基としては同様にフェニレン基、ビフェニレン基等のほか、このような芳香族基が、メチレン、エチレン等のアルキレン基、又前記骨格となるメチレン

10

20

30

40

50

基等がヘテロ原子により置換されたエーテル、チオエーテル基等を含むアルキレン基、或いは酸素原子、硫黄原子、窒素原子等によりそれぞれエーテル結合、チオエーテル結合、イミノ基等を介してそれぞれ複数連結した基であってもよい。

【0413】

前記一般式 (B 1 1 - 1) で示されるシクロファン化合物のうち好ましいものは一般式 (B 1 1 - 2) で表される化合物である。

【0414】

一般式 (B 1 1 - 2) において、 $R_1 \sim R_8$  は水素原子または置換基を表し、置換基としては、アルキル基 (メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アリール基 (フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基、ピロール基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、トリアゾリル基、オキサジアゾリル基、チアジアゾリル基、チエニル基、カルバゾリル基等)、アルケニル基 (ビニル基、プロペニル基、スチリル基等)、アルキニル基 (エチニル基等)、アルキルオキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基 (フェノキシ基等)、アルキルチオ基 (メチルチオ基、エチルチオ基、*i*-プロピルチオ基等)、アリールチオ基 (フェニルチオ基等)、アミノ基、アルキルアミノ基 (ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等)、アリールアミノ基 (アニリノ基、ジフェニルアミノ基等)、ハロゲン原子 (フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、シアノ基、ニトロ基、非芳香族性複素環基 (ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、等)、シリル基 (トリメチルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、トリフェニルシリル基等) 等が挙げられる。それぞれの置換基はさらに置換基を有していても良い。又、隣接する例えば  $R_1$  及び  $R_2$ 、 $R_3$  及び  $R_4$ 、 $R_5$  及び  $R_6$ 、 $R_7$  及び  $R_8$  等の基同士は連結して環を形成していてもよい。

【0415】

この中で好ましいものとしては、アリール基、アルケニル基、アルキニル基が挙げられる。

【0416】

$R_9 \sim R_{16}$  は水素原子または置換基を表すが、置換基としては前記  $R_1 \sim R_8$  で説明したものと同義であるが、好ましくは水素原子である。

【0417】

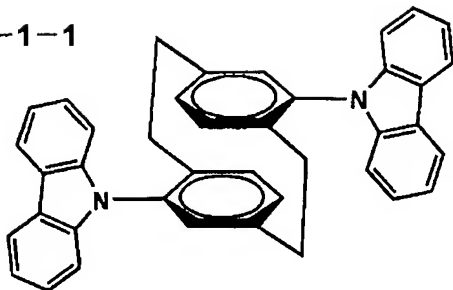
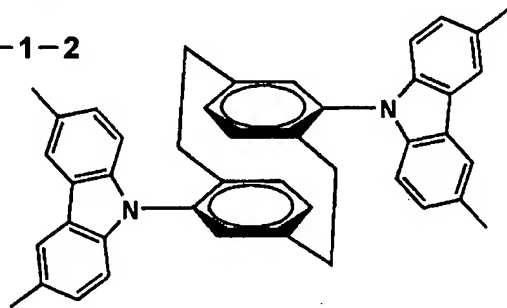
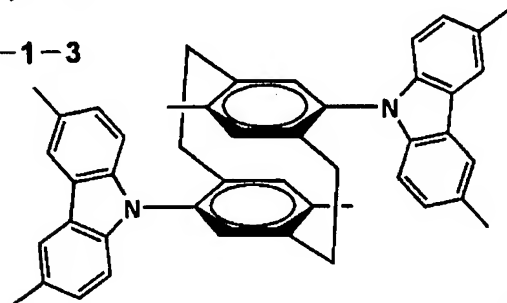
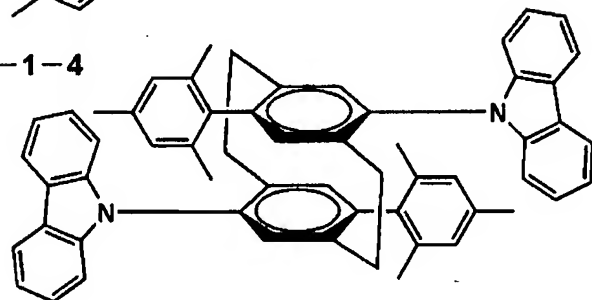
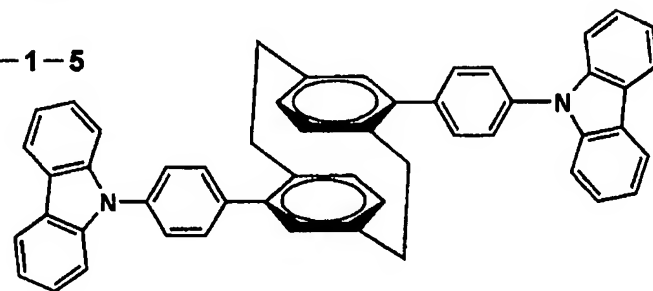
一般式 (B 1 1 - 3) において、 $R_a$ 、 $R_b$ 、 $R_c$  および  $R_d$  は水素原子または置換基を表すが、該置換基は前記  $R_1 \sim R_8$  で説明したものと同義であり、好ましい置換基も同様である。

【0418】

以下に、一般式 (B 1 1 - 1)、(B 1 1 - 2) および (B 1 1 - 3) で表される化合物の具体例を示すが、本発明におけるシクロファン化合物はこれらに限定されるものではない。

【0419】

【化308】

**B11-1-1****B11-1-2****B11-1-3****B11-1-4****B11-1-5**

[ 0 4 2 0 ]  
[ 化 3 0 9 ]

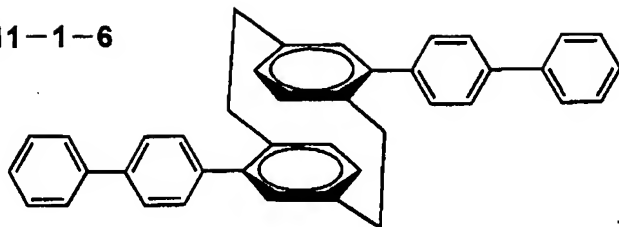
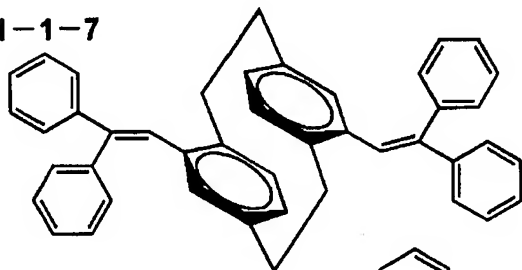
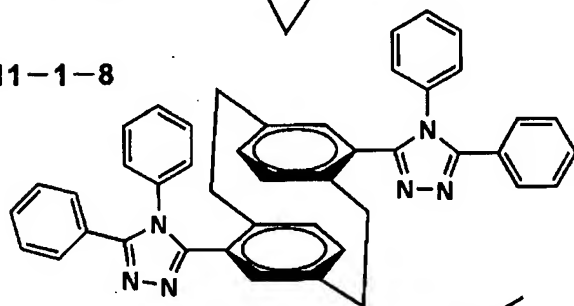
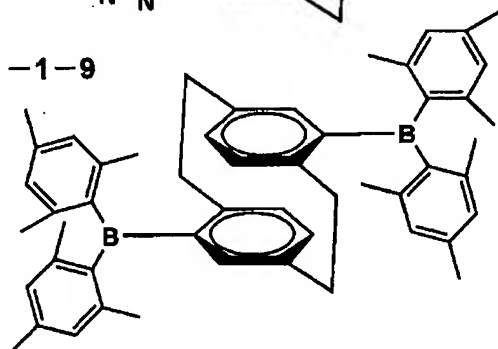
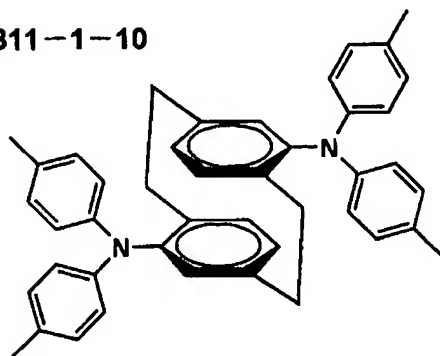
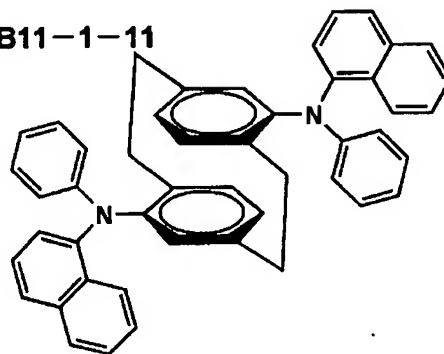
10

20

30

40



**B11-1-6****B11-1-7****B11-1-8****B11-1-9****B11-1-10****B11-1-11**

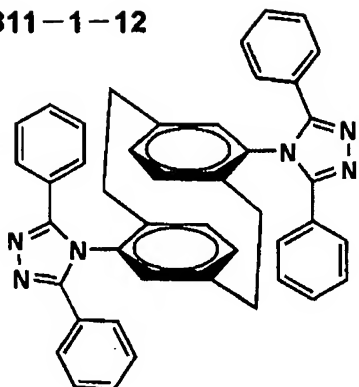
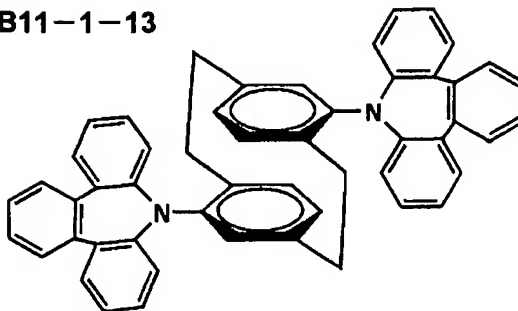
10

20

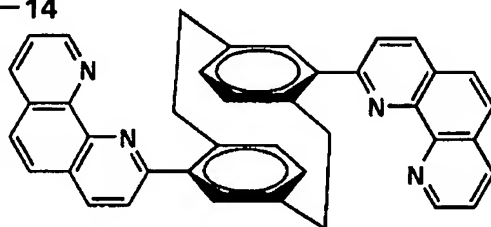
30

40

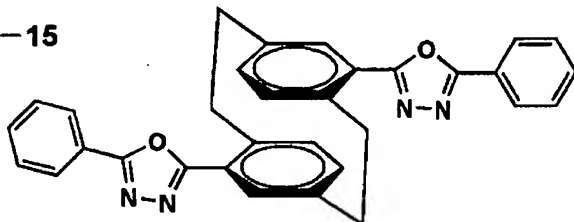
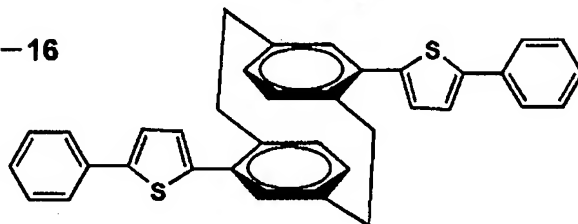
【 0 4 2 1 】  
【 化 3 1 0 】

**B11-1-12****B11-1-13**

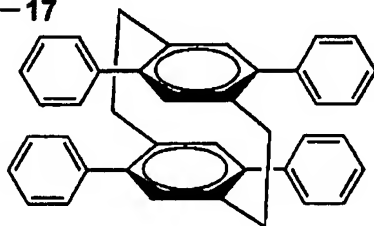
10

**B11-1-14**

20

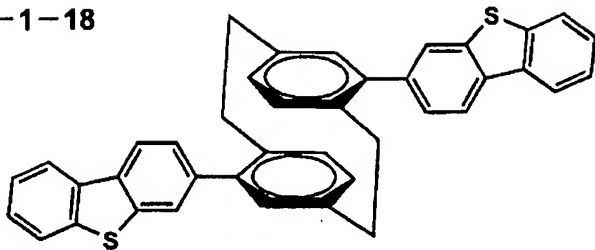
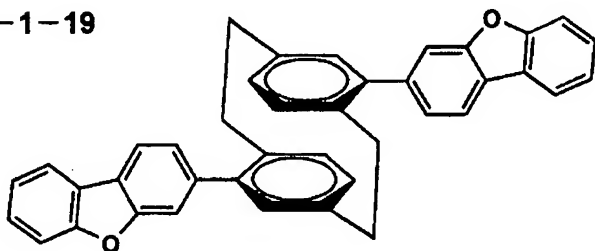
**B11-1-15****B11-1-16**

30

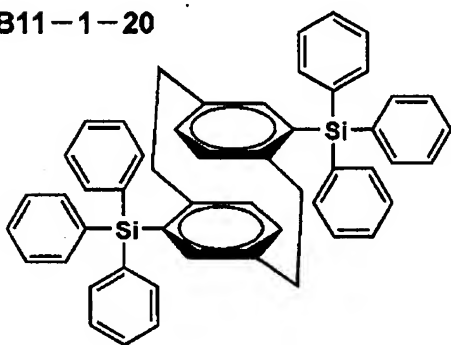
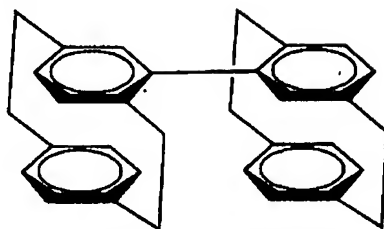
**B11-1-17**

40

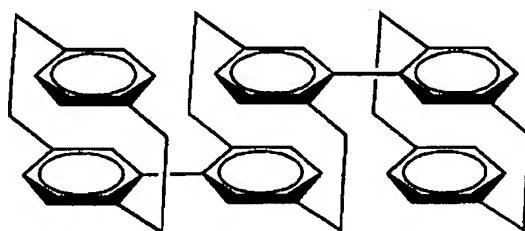
【 0 4 2 2 】  
【 化 3 1 1 】

**B11-1-18****B11-1-19**

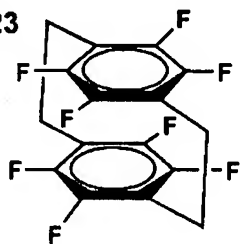
10

**B11-1-20****B11-1-21**

20

**B11-1-22**

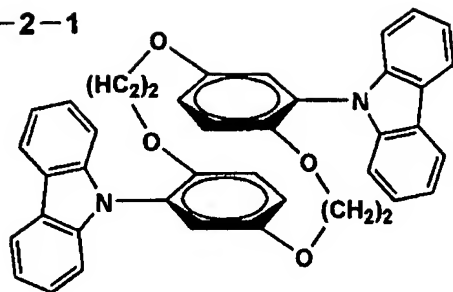
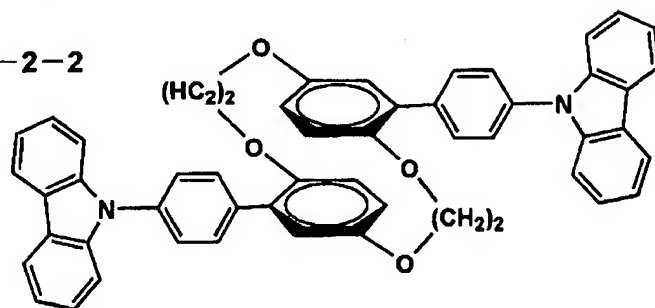
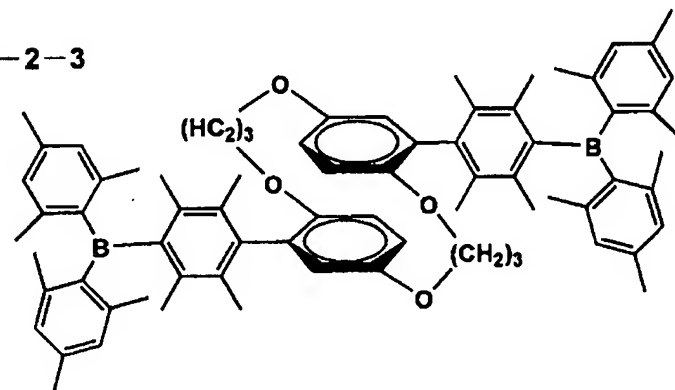
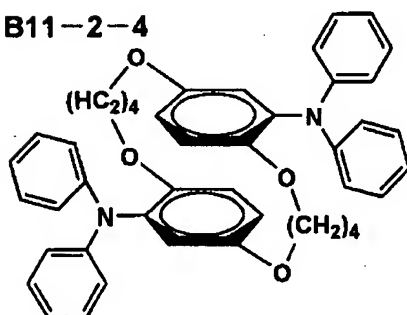
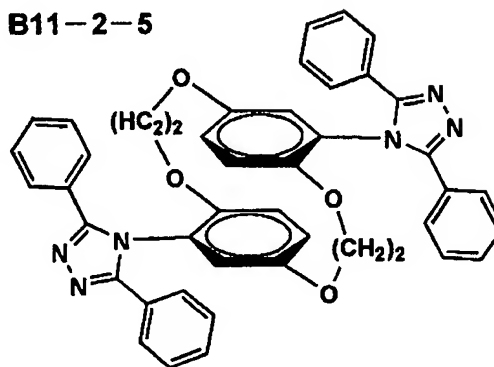
30

**B11-1-23**

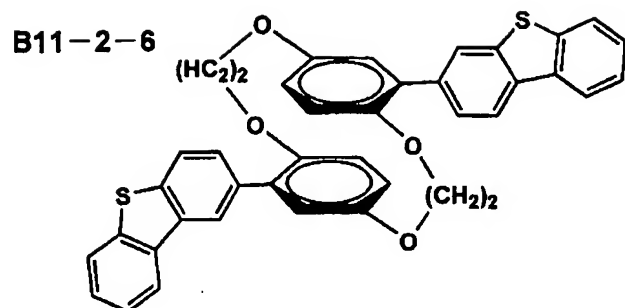
40

【 0 4 2 3 】

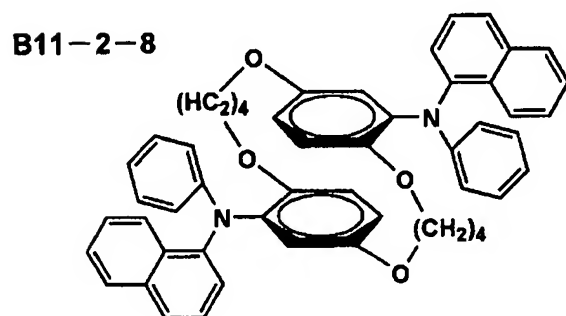
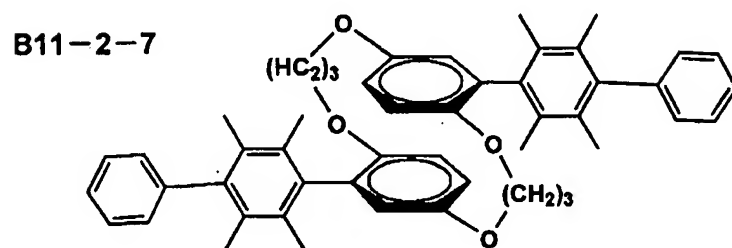
【 化 3 1 2 】

**B11-2-1****B11-2-2****B11-2-3****B11-2-4****B11-2-5**

[ 0 4 2 4 ]  
[ 化 3 1 3 ]



10

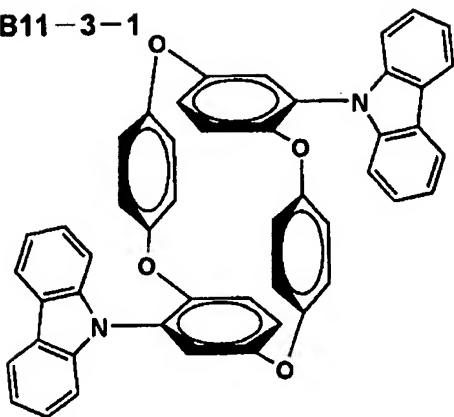


20

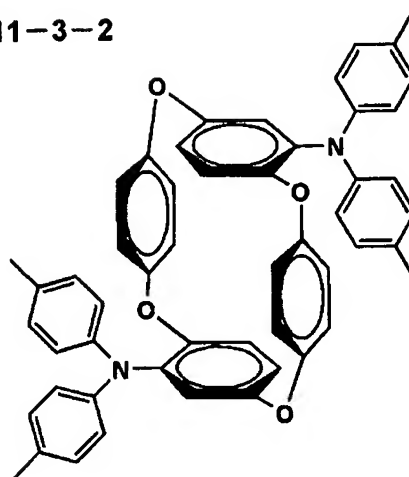
[ 0 4 2 5 ]  
[ 化 3 1 4 ]

30

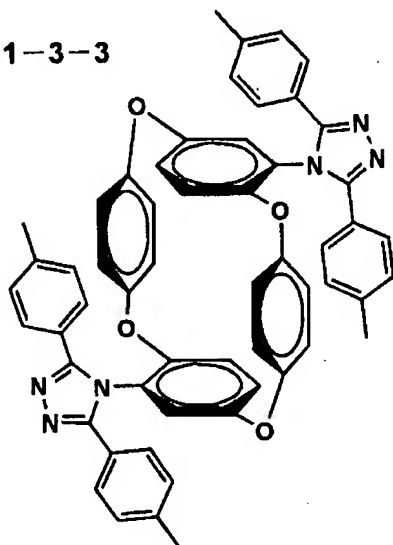
B11-3-1



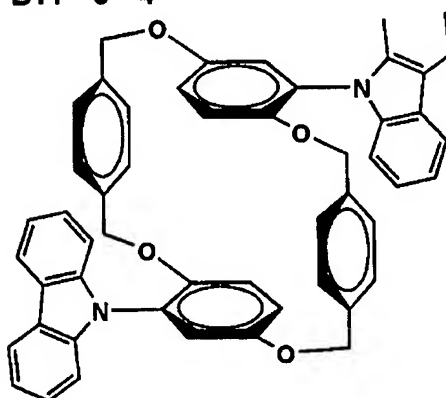
B11-3-2



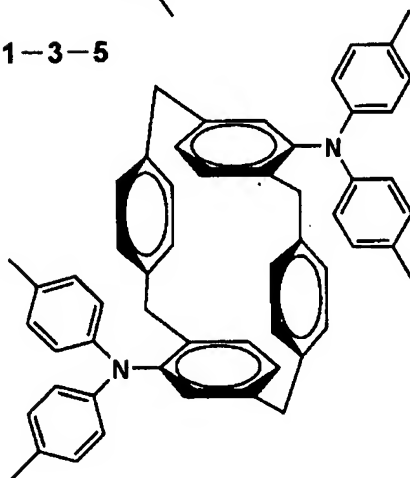
B11-3-3



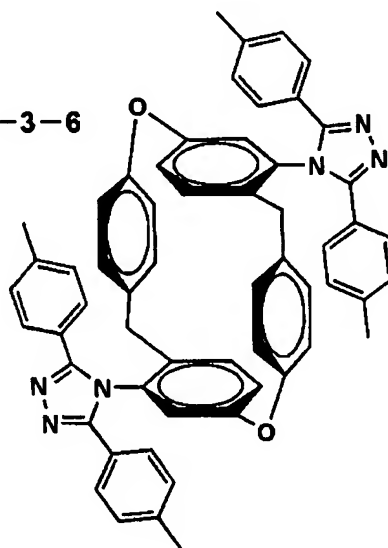
B11-3-4



B11-3-5



B11-3-6



[ 0 4 2 6 ]  
[ 化 3 1 5 ]

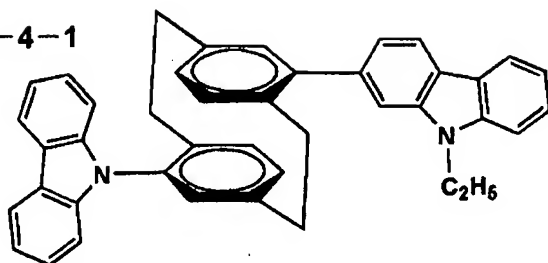
10

20

30

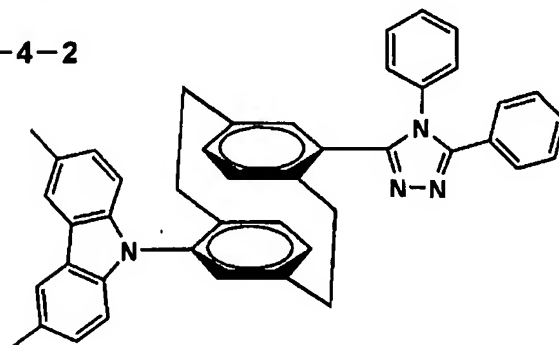
40

B11-4-1



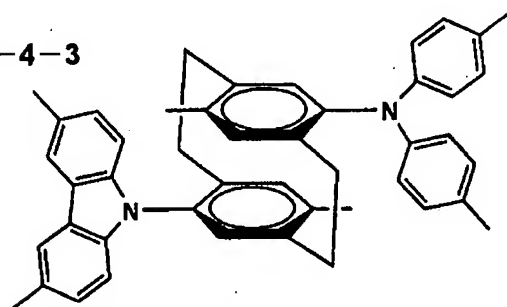
10

B11-4-2



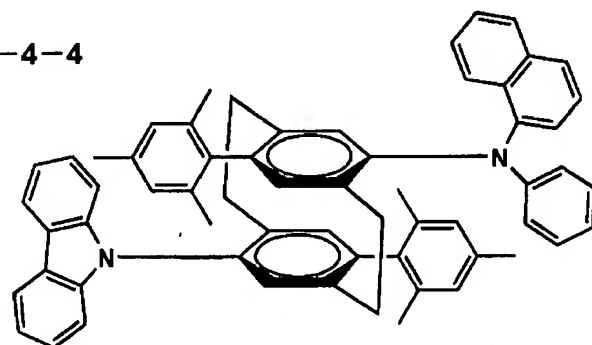
20

B11-4-3



30

B11-4-4



40

## 【0427】

これらのシクロファン化合物は公知の方法で容易に合成でき、一般的には下記に示す合成経路で比較的良好な収率で得ることができる。

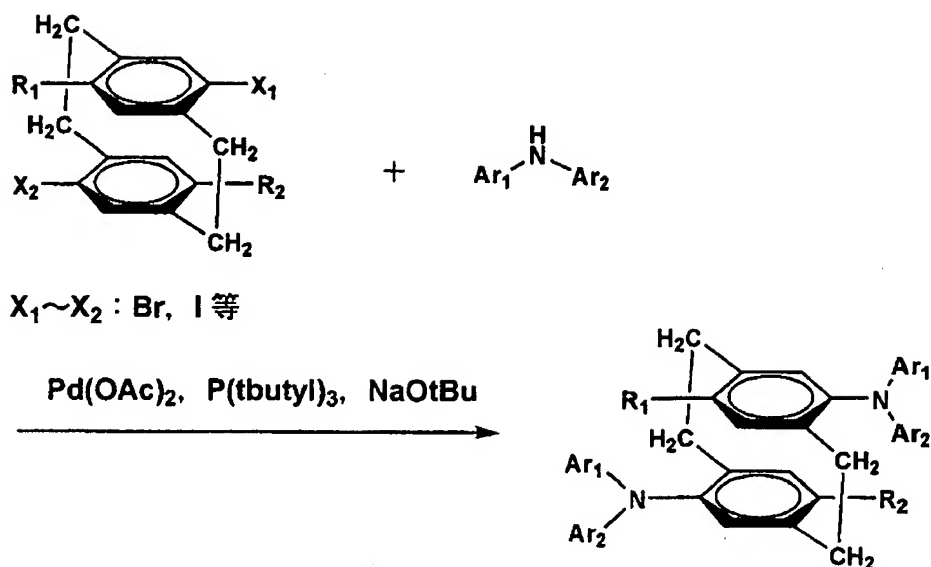
## 【0428】

(合成例)

シクロファンに置換アミノ基を導入する場合

## 【0429】

【化316】



$\text{X}_1 \sim \text{X}_2$ : Br, I 等

$\text{Pd}(\text{OAc})_2, \text{P}(\text{tbutyl})_3, \text{NaOtBu}$

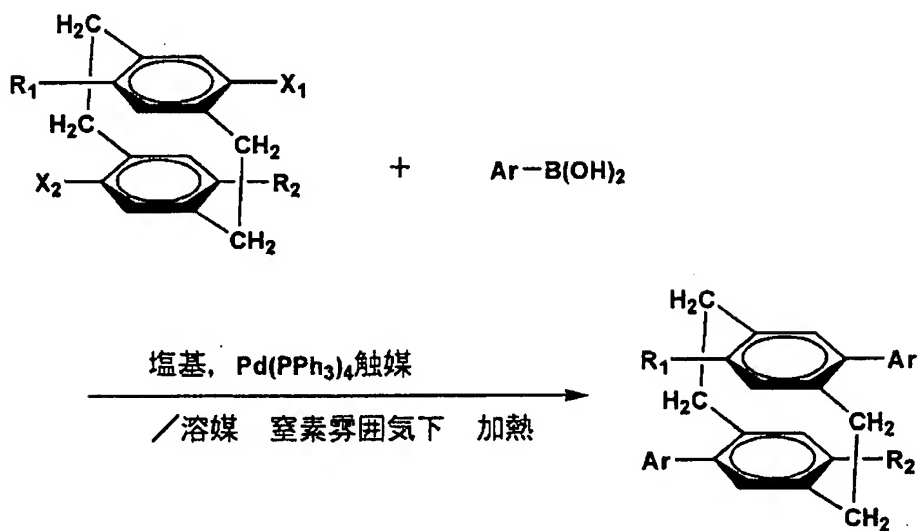
【0430】

(合成例2)

シクロファンに置換アリール基を導入する場合

【0431】

【化317】



【0432】

以上の合成方法は下記文献にも記載されている一般的なものである。

【0433】

M. Nishiyama et al., Tetrahedron Lett. 39 (1998), 2367-2370

特許316360号(JP)アリールアミン類の合成法 東ソー 西山ら(出願日97.4.15 優先日96.4.19)



J. F. Hartwig, Angew. Chem. Ind. Ed. 37 (1998), 2046-2067

M. Nishiyama et al., Tetrahedron Lett. 41 (2000), 481-484

N. Miyaura et al., Synth. Commun. 11 (7) (1981), 513-519

又、これらの化合物の分子量は300~2000であることが好ましい。分子量が300~2000であるとT<sub>g</sub>（ガラス転移温度）が上昇し、熱安定性が向上し、素子寿命が改善される。より好ましい分子量は500~2000である。

【0434】

ただし、これらの化合物を繰り返し単位の一部として含むポリマーであってもよく、その場合は上記好ましい分子量から逸脱しても構わない。

【0435】

次に、一般式(C1-1-1)~一般式(C1-8-2)に示される化合物について説明する。分子内にオレフィンを含有している化合物を本発明においてホスト化合物として用いることができるが、好ましくは一般式(C1-1-1)~一般式(C1-8-2)に示される化合物である。

【0436】

一般式(C1-1-1)中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>は、水素原子、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基又はシアノ基を表す。

【0437】

アルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロ-n-ブチル基、パーフルオロ-t-ブチル基、t-ブチル基、ベンジル基等がある。

【0438】

アルコキシ基としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等がある。

【0439】

アリール基としては、例えばフェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等がある。

【0440】

複素環基としては、ピロリル基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、トリアゾリル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、フリル基、チエニル基、チアゾリル基等がある。

【0441】

これらの基はさらに置換されていてもよく、置換基としては、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、ニトロ基、シアノ基、カルボキシ基、スルホ基、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルキルスルホニル基、アリールスルホニル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシル基、アシルオキシ基、アミノ基、カルボンアミド基、スルホンアミド基、カルバモイル基、スルファモイル基、ウレイド基、アルコキシカルボニルアミノ基、スルファモイルアミノ基等が挙げられる。

【0442】

一般式(C1-1-1)中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>のうち、少なくとも一つは、アリール基、または、複素環基である。

【0443】

好ましくは、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>のうち、2つがアリール基又はすべてアリール基の時である。

【0444】

一般式(C1-1-2)中、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub>はアリール基または、複素環基を表し、R<sub>5</sub>、R

10

20

30

40

50

$R_6$  はアリール基、複素環基、または、脂環式炭化水素の残基を表し、かつ、 $R_5$ 、 $R_6$  のいずれか一方は脂環式炭化水素の残基を表す。 $R_5$ 、 $R_6$  は脂環式の環を形成してもよい。脂環式炭化水素の残基としては、シクロアルキル基、シクロアルケニル基等の残基がある。脂環式炭化水素の残基として、特に好ましくは、シクロアルキル基（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）である。これらの基は、さらに置換されていても良い。

#### 【0445】

一般式 (C1-1-3) 中、 $X_3$ 、 $X_4$  はアリール基、または、複素環基を表し、 $R_7$ 、 $R_8$  はアリール基、複素環基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、または、ハロゲン原子を表し、かつ、 $R_7$ 、 $R_8$  のいずれか一方はアリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、または、ハロゲン原子を表す。ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等がある。好ましくは、フッ素原子である。

10

#### 【0446】

一般式 (C1-2-1) 中、 $R_9$ 、 $R_{10}$ 、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$  は、水素原子、または、置換基を表し、 $R_9$ 、 $R_{10}$ 、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$  の少なくとも一つの置換基は、下記一般式 (C1-2-2) で表される。

#### 【0447】

一般式 (C1-2-2)

\*- $A_{20}$ - $A_{21}$ - $R_{20}$

式中、 $A_{20}$ 、 $A_{21}$  は単環の芳香族環、または、複素環を表し、 $R_{20}$  は水素原子、または、置換基を表し、\*は結合部位を表す。

20

#### 【0448】

一般式 (C1-2-2)、そして (C1-2-3) 中、 $A_{20}$ 、 $A_{21}$ 、 $A_{22}$ 、 $A_{23}$ 、 $A_{24}$ 、 $A_{25}$  及び一般式 (5) 中、 $A_{51}$ 、 $A_{52}$ 、 $A_{53}$ 、 $A_{54}$  は、それぞれ独立に単環の芳香族環または複素環を表す。単環の芳香族環または複素環の具体例としてはベンゼン、フラン、チオフェン、ピロール、オキサゾール、イミダゾール、チアゾール、トリアゾール、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン等が挙げられる。

#### 【0449】

$R_{21}$  から  $R_{24}$  は、水素原子、または、置換基であり、 $R_{21}$  から  $R_{24}$  で表される置換基としては、アルキル基（例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロ- $n$ -ブチル基、パーフルオロ- $t$ -ブチル基、 $t$ -ブチル基、ベンジル基等）、シクロアルキル基（例えばシクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アラルキル基（例えばベンジル基、2-フェネチル基等）、アリール基（例えばフェニル基、ナフチル基、 $p$ -トリル基、 $p$ -クロロフェニル基、フルオレニル基等）、アルコキシ基（例えばエトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等）、アリールオキシ基（例えばフェノキシ基等）、ヒドロキシル基、アミノ基（ジメチルアミノ基、ジアリールアミノ基）、アルケニル基（例えばアリル基、1-エテニル基、1-プロペニル基、1-ブテニル基、1-オクタデセニル基等）、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等）等が挙げられる。これらの基はさらに置換されていてもよく、前記置換基としては、一般式 (C1-1-1) で挙げたものが挙げられる。

30

40

#### 【0450】

一般式 (C1-2-3) において、 $A_{22}$ 、 $A_{23}$  が複素環の場合、ヘテロ原子が2個以上の場合が好ましい。

#### 【0451】

一般式 (C1-3)、(C1-4) において、 $A_{31}$ 、 $A_{41}$ 、 $A_{42}$  は、芳香族環、または、複素環を表す。これらの芳香族環、または、複素環は、単環基、縮合多環基、または、単環もしくは縮合多環を含む芳香族単位が連結した基である。具体的には、ベンゼン、トルエン、ナフタレン、アントラセン、フェナントレン、フルオレン、ピレン、ペリレ

50

ン、トリフェニレン、アズレン、フルオレノン、フラン、チオフェン、ピロール、ピリジン、オキサゾール、ピラジン、ピリミジン、オキサジアゾール、トリアゾール、インドール、キノリン、イソキノリン、カルバゾール、アクリジン、ベンゾチアゾール、フェナントリン、キナクリドン等の置換もしくは未置換の芳香族環もしくは縮合芳香環の残基、さらには、ビフェニル、ターフェニル、ピナフチル、トリフェニルベンゼン、ジフェニルアントラセン、ルブレン、ビピリジン、ビキノリン、ビチオフェン、等の芳香環構造単位同士が直接連結した残基である。

【0452】

A<sub>41</sub>、A<sub>42</sub>は、スチリル基、または、置換スチリル基が置換基として導入された場合が最も好ましい。

10

【0453】

一般式(C1-6)において、A<sub>61</sub>は芳香族環基、または、複素環基を表す。芳香族環基としては、フェニル基、ナフチル基、アントラニル基、フェナンスリル基、ビレニル基、コロニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、複素環基としては、フルオレニル基、フラニル基、チエニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、イミダゾリル基、等が挙げられる。

【0454】

一般式(C1-5)において、A<sub>51</sub>、A<sub>52</sub>、A<sub>53</sub>、A<sub>54</sub>は単環の芳香族環、または、複素環を表し、R<sub>51</sub>、R<sub>52</sub>、R<sub>53</sub>、R<sub>54</sub>、R<sub>55</sub>、R<sub>56</sub>は水素原子、または、置換基を表す。芳香族環基としては、フェニル基、ナフチル基、アントラニル基、フェナンスリル基、ビレニル基、コロニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、複素環基としては、フルオレニル基、フラニル基、チエニル基、ベンゾチエニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、イミダゾリル基、等が挙げられる。

20

【0455】

一般式(C1-3)、(C1-4)、(C1-5)、(C1-6)、(C1-7)、(C1-8-1)、(C1-8-2)において、R<sub>31</sub>~R<sub>36</sub>、R<sub>41</sub>~R<sub>48</sub>、R<sub>51</sub>~R<sub>56</sub>、R<sub>61</sub>~R<sub>63</sub>、R<sub>71</sub>~R<sub>76</sub>、R<sub>81</sub>~R<sub>92</sub>は、水素原子、または、置換基を表す。R<sub>31</sub>~R<sub>36</sub>、R<sub>41</sub>~R<sub>48</sub>、R<sub>51</sub>~R<sub>56</sub>、R<sub>61</sub>~R<sub>63</sub>、R<sub>71</sub>~R<sub>76</sub>、R<sub>81</sub>~R<sub>92</sub>が置換基の場合、その具体例としては、一般式(C1-2-1)~(C1-2-3)の中で挙げたものと同義である。R<sub>35</sub>、R<sub>36</sub>が置換基を表す場合、好ましくは、脂環系炭化水素の残基、ハロゲン原子、アルキルチオ基、アリールチオ基、または、アリールオキシ基であり、さらに、好ましくは、フッ素原子である。R<sub>41</sub>、R<sub>42</sub>は、水素原子が好ましい。R<sub>52</sub>、R<sub>53</sub>が置換基を表す場合、好ましくはフッ素原子である。

30

【0456】

一般式(C1-8-1)、(C1-8-2)において、X<sub>5</sub>、X<sub>6</sub>、X<sub>7</sub>は、-O-、-S-、-N:R<sub>a</sub>-を表す。ここで、R<sub>a</sub>は置換基である。Z<sub>1</sub>、Z<sub>2</sub>、Z<sub>3</sub>は、5員環と共に縮合環を形成するのに必要な原子群である。具体的には、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、複素環等が挙げられる。

40

【0457】

本発明に係わるこれらのホスト化合物は、分子内の部分構造としてトリアリールアミンを含有しても良い。また、素子の寿命に関しては、5配位のアルミニウム錯体を電子輸送層に導入した場合、大きく改善され好ましい。

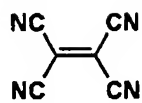
【0458】

以下に、具体的化合物例を示すが、本発明のホスト化合物が、これらに限定されるものではない。

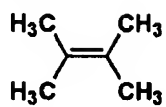
【0459】

【化318】

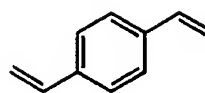
C1-1-1



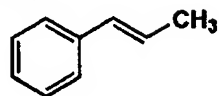
C1-1-2



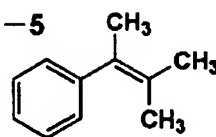
C1-1-3



C1-1-4

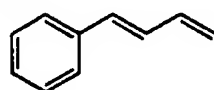


C1-1-5

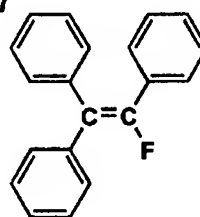


10

C1-1-6

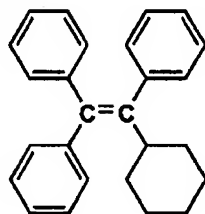


C1-1-7

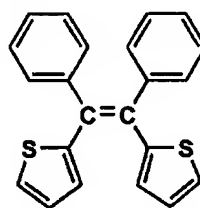


20

C1-1-8

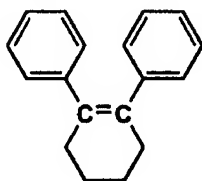


C1-1-9

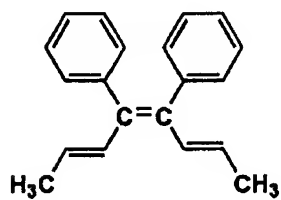


30

C1-1-10



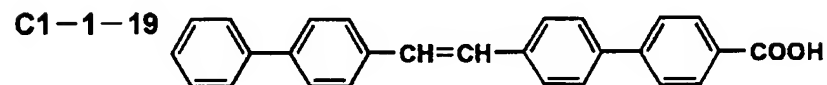
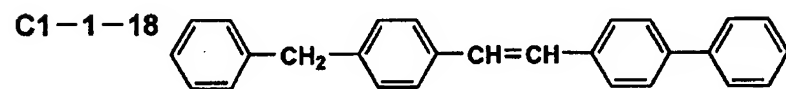
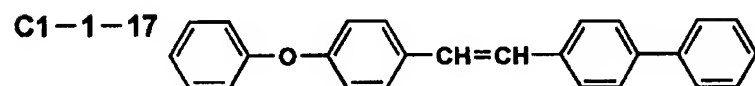
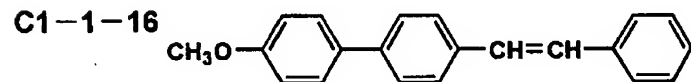
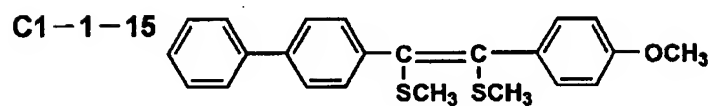
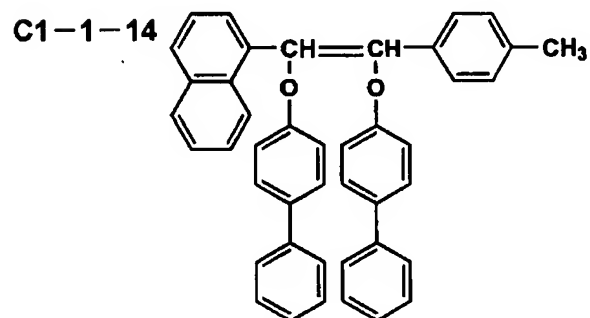
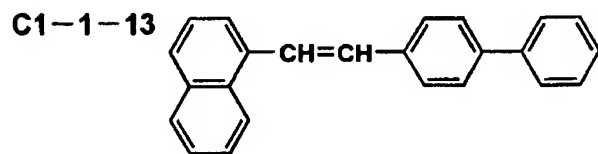
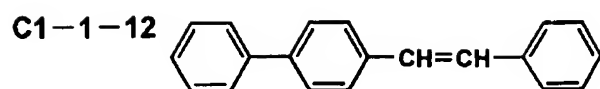
C1-1-11



【 0 4 6 0 】

【 化 3 1 9 】

40



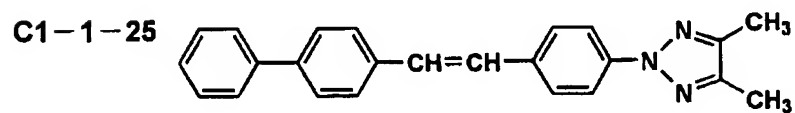
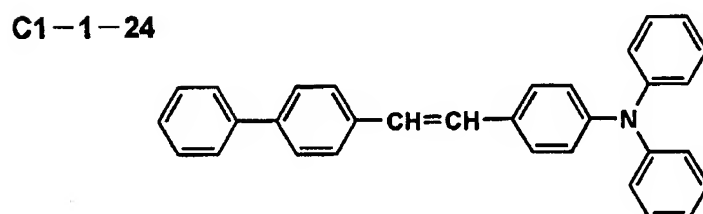
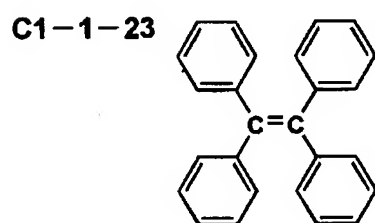
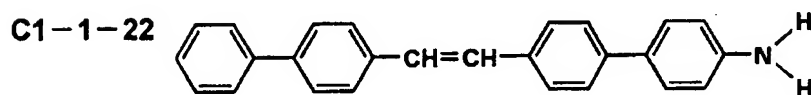
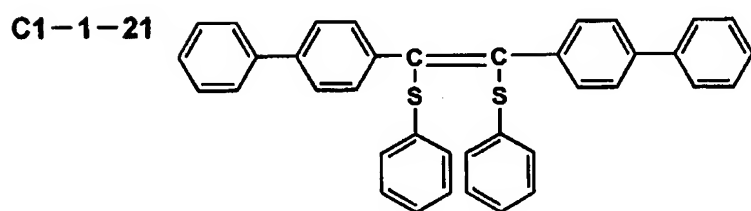
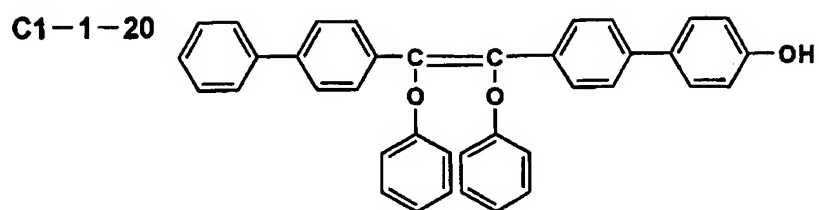
[ 0 4 6 1 ]  
[ 化 3 2 0 ]

10

20

30

40



【 0 4 6 2 】  
【 化 3 2 1 】

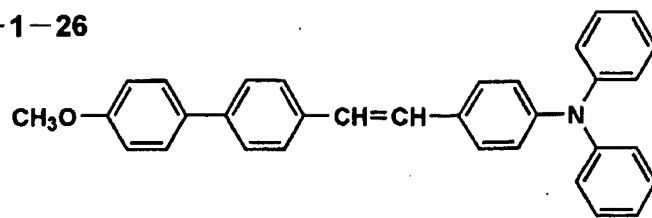
10

20

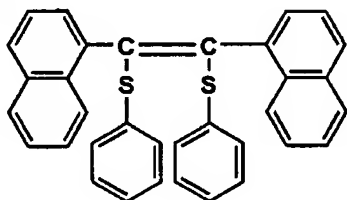
30

40

C1-1-26

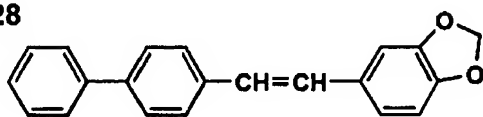


C1-1-27



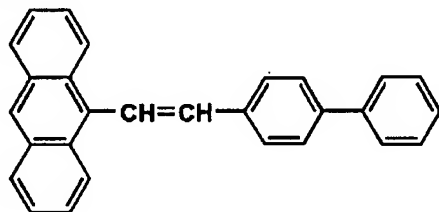
10

C1-1-28

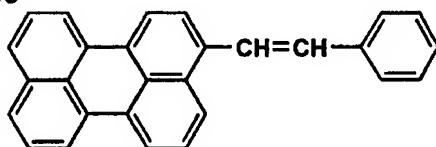


20

C1-1-29

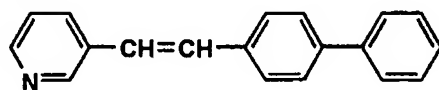


C1-1-30

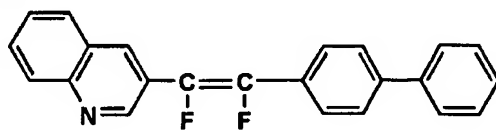


30

C1-1-31



C1-1-32

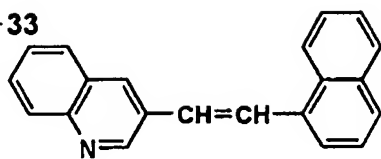


40

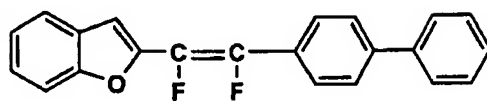
【 0 4 6 3 】

【 化 3 2 2 】

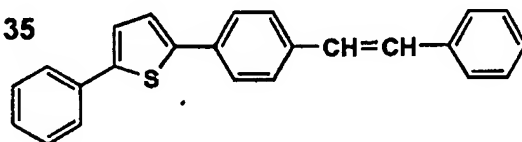
C1-1-33



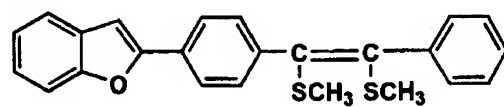
C1-1-34



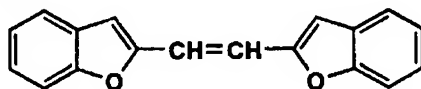
C1-1-35



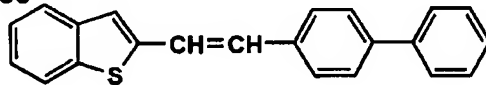
C1-1-36



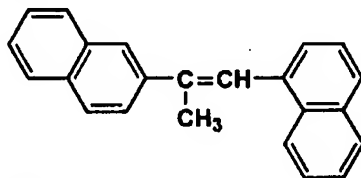
C1-1-37



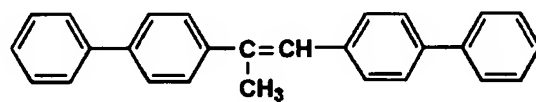
C1-1-38



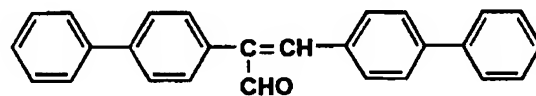
C1-1-39



C1-1-40



C1-1-41



【 0 4 6 4 】

【 化 3 2 3 】

10

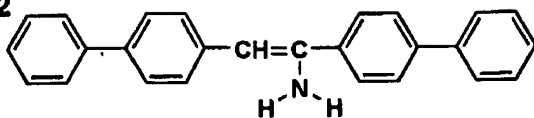
20

30

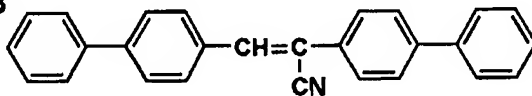
40



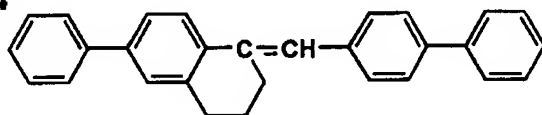
C1-1-42



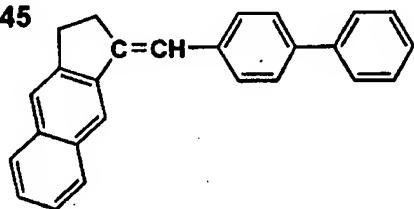
C1-1-43



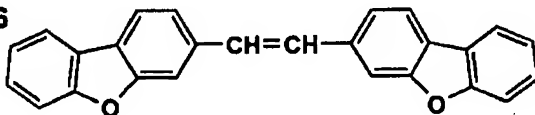
C1-1-44



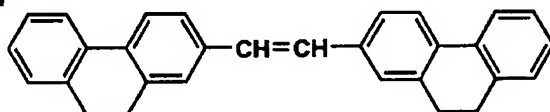
C1-1-45



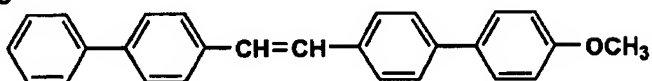
C1-1-46



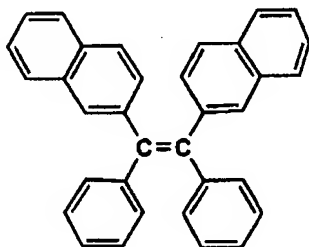
C1-1-47



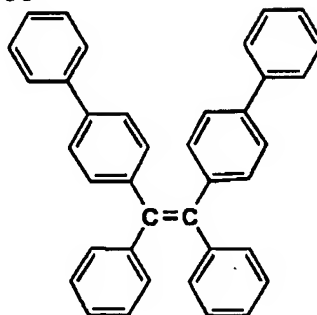
C1-1-48



C1-1-49

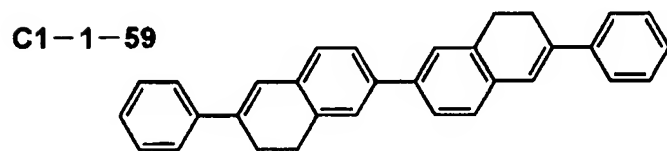
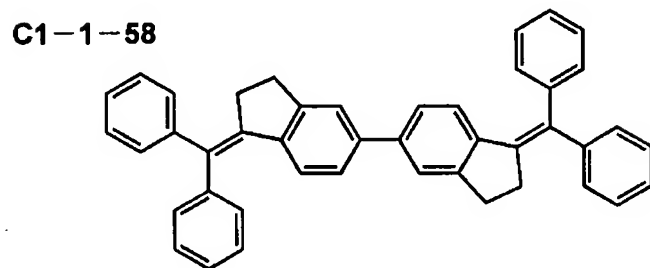
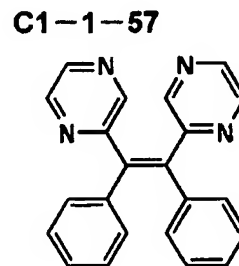
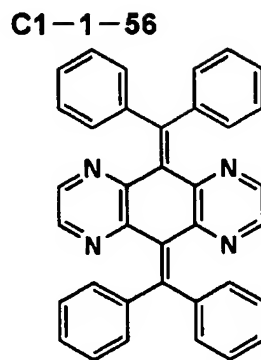
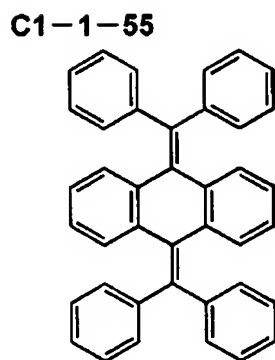
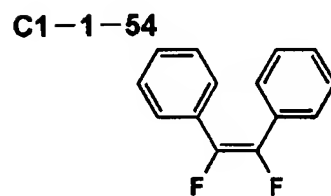
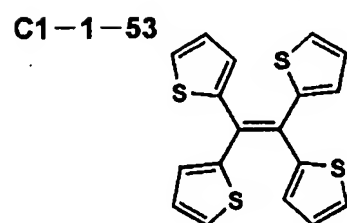
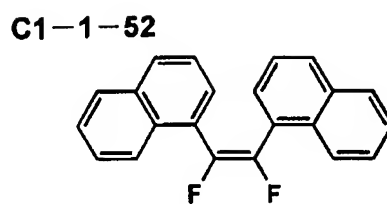
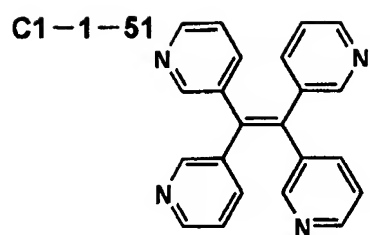


C1-1-50



【 0 4 6 5 】

【 化 3 2 4 】



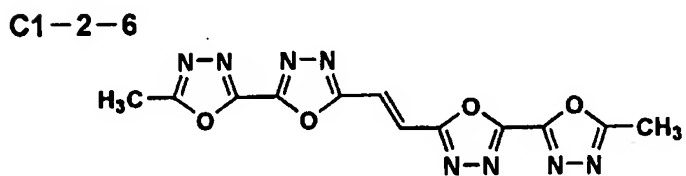
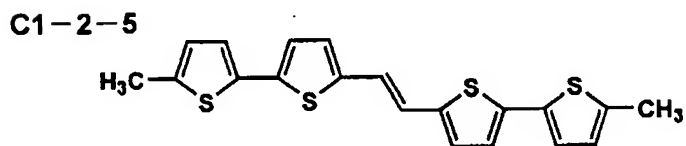
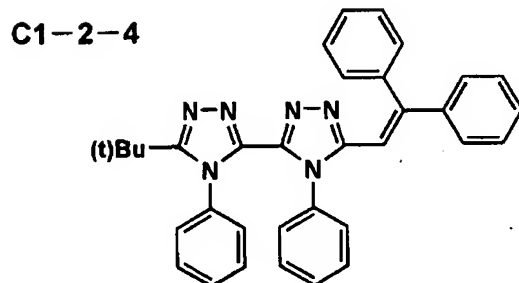
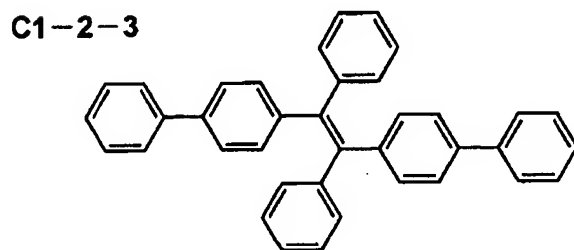
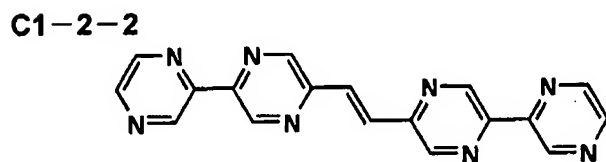
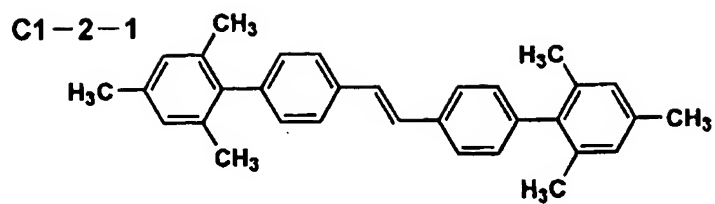
10

20

30

40

【 0 4 6 6 】  
【 化 3 2 5 】



[ 0 4 6 7 ]  
[ 化 3 2 6 ]

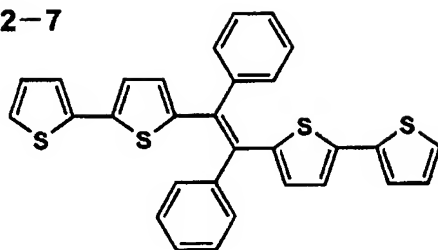
10

20

30

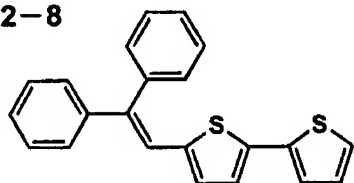
40

C1-2-7

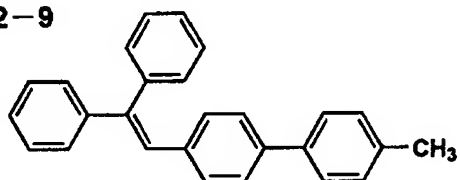


10

C1-2-8

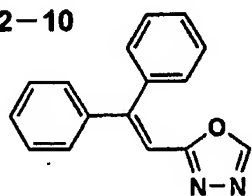


C1-2-9



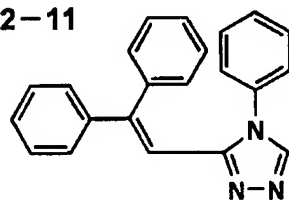
20

C1-2-10



30

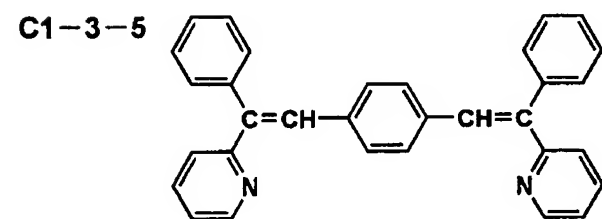
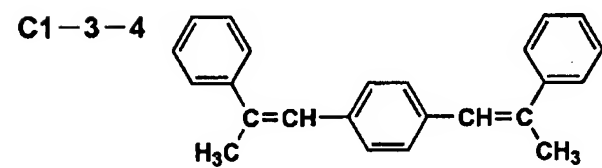
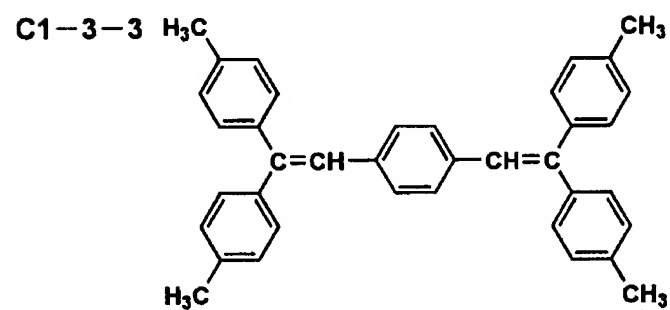
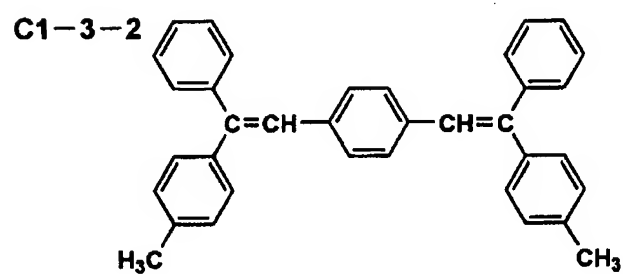
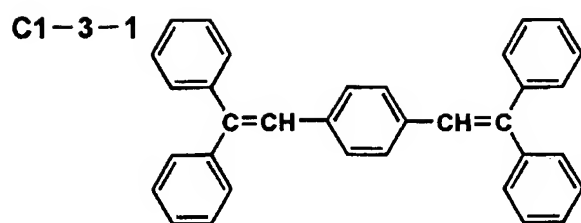
C1-2-11



【 0 4 6 8 】

【 化 3 2 7 】

40



10

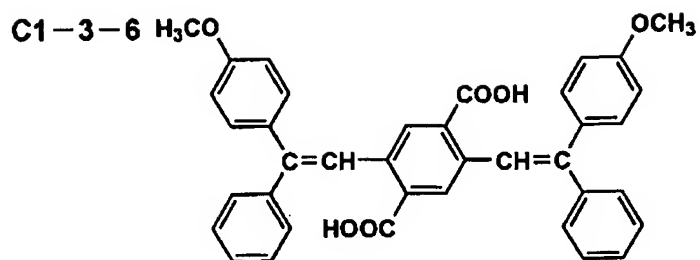
20

30

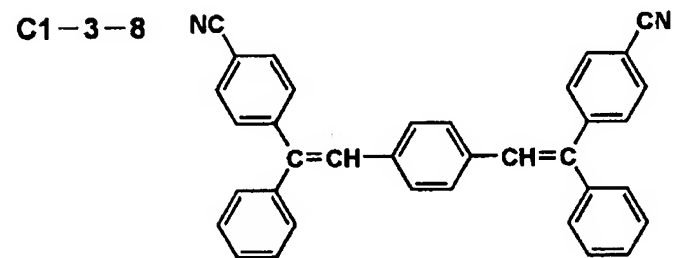
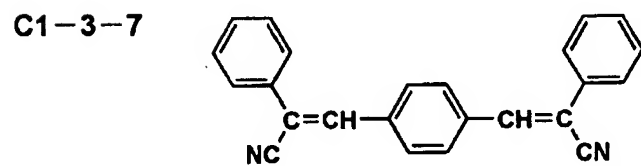
40

【 0 4 6 9 】

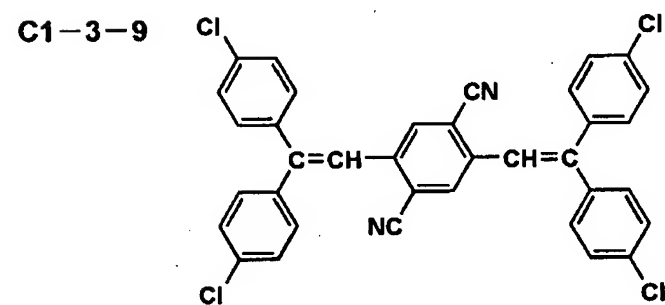
【 化 3 2 8 】



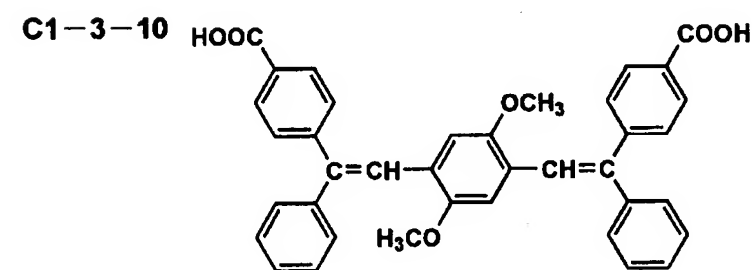
10



20



30

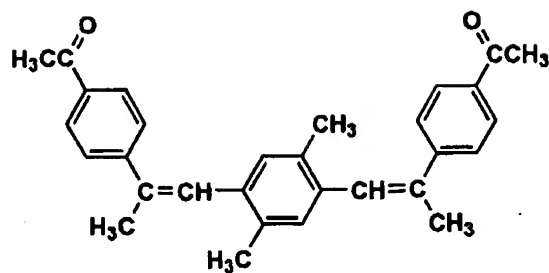


40

【 0 4 7 0 】

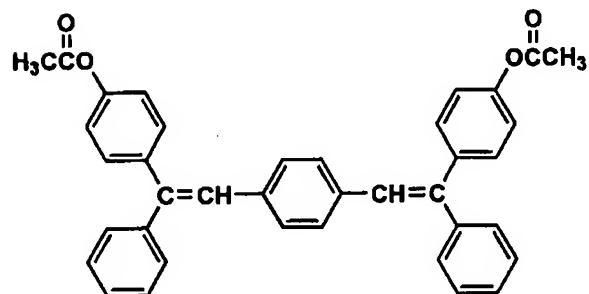
【 化 3 2 9 】

C1-3-11



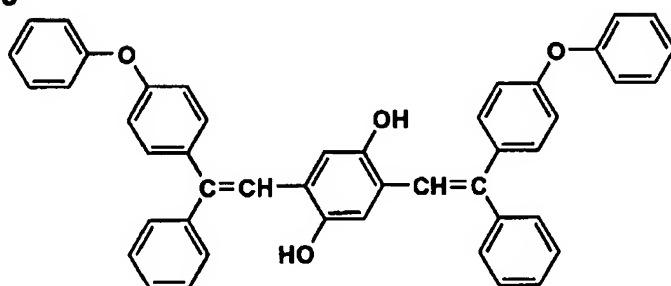
10

C1-3-12



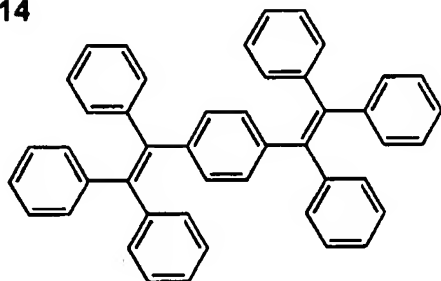
20

C1-3-13



30

C1-3-14

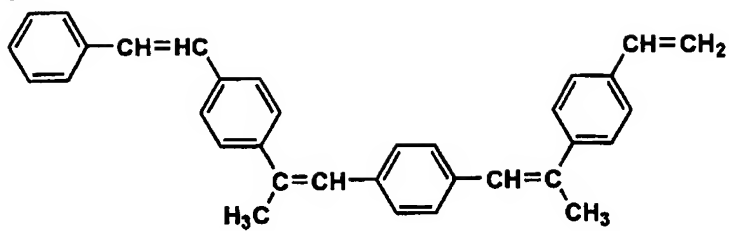


40

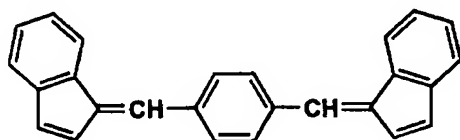
【 0 4 7 1 】

【 化 3 3 0 】

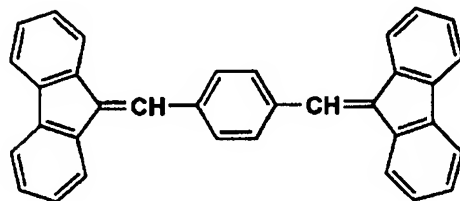
C1-3-15



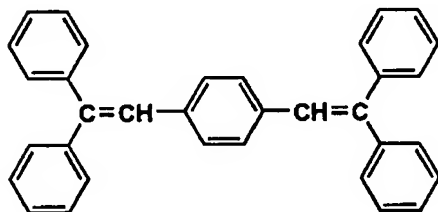
C1-3-16



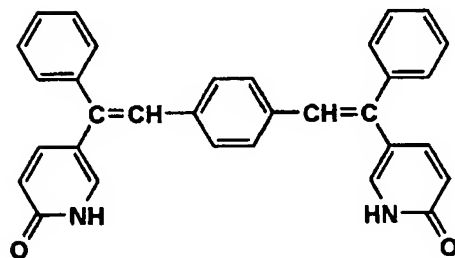
C1-3-17



C1-3-18



C1-3-19



10

20

30

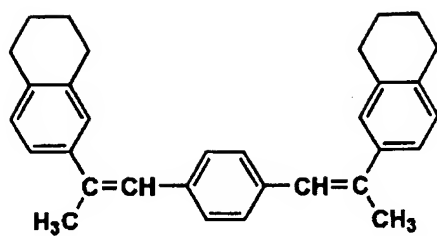
40

【 0 4 7 2 】

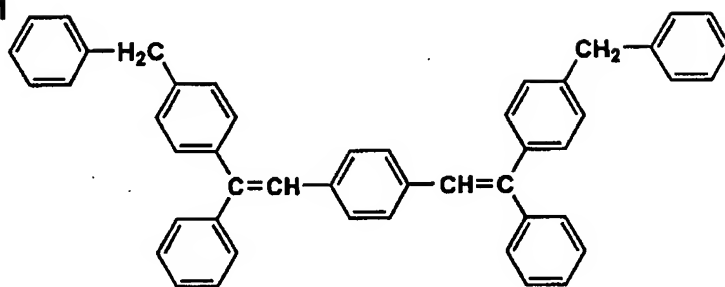
【 化 3 3 1 】



C1-3-20

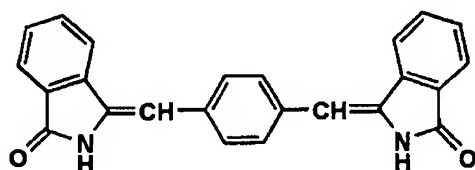


C1-3-21



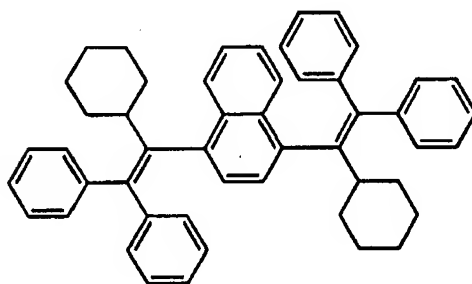
10

C1-3-22



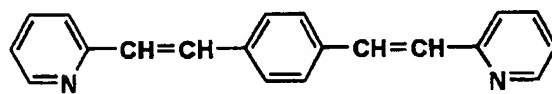
20

C1-3-23

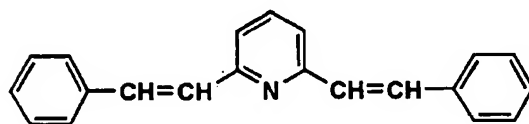


30

C1-3-24



C1-3-25

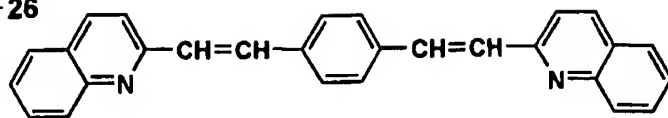


40

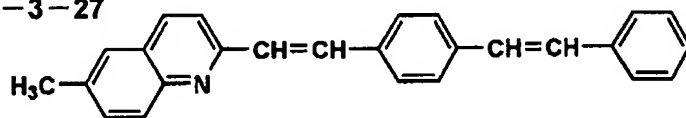
【 0 4 7 3 】

【 化 3 3 2 】

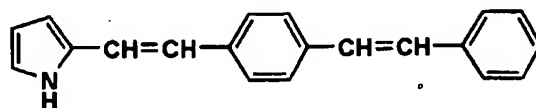
C1-3-26



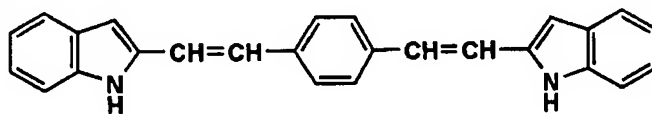
C1-3-27



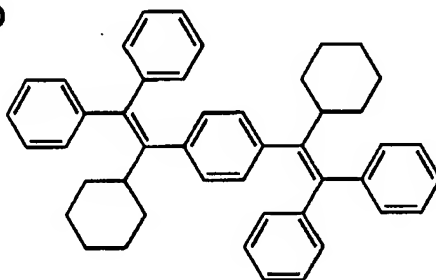
C1-3-28



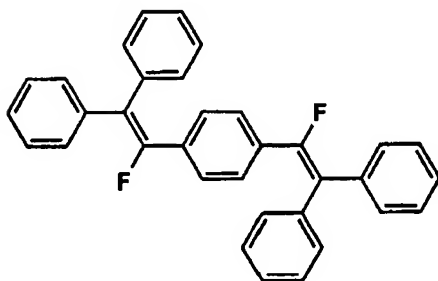
C1-3-29



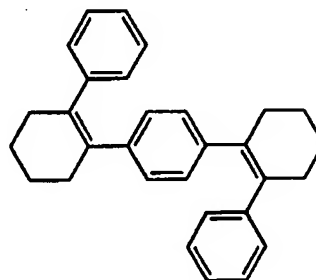
C1-3-30



C1-3-31



C1-3-32



[ 0 4 7 4 ]  
[ 化 3 3 3 ]

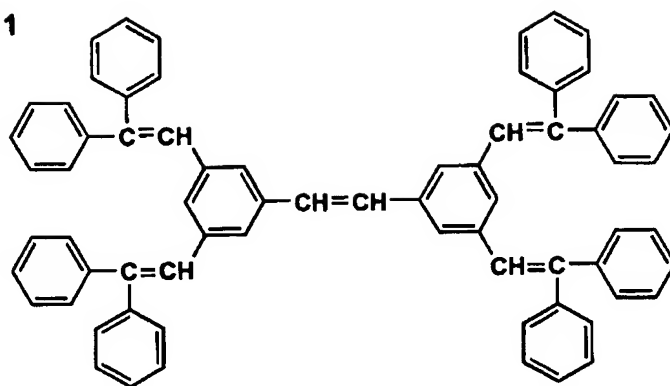
10

20

30

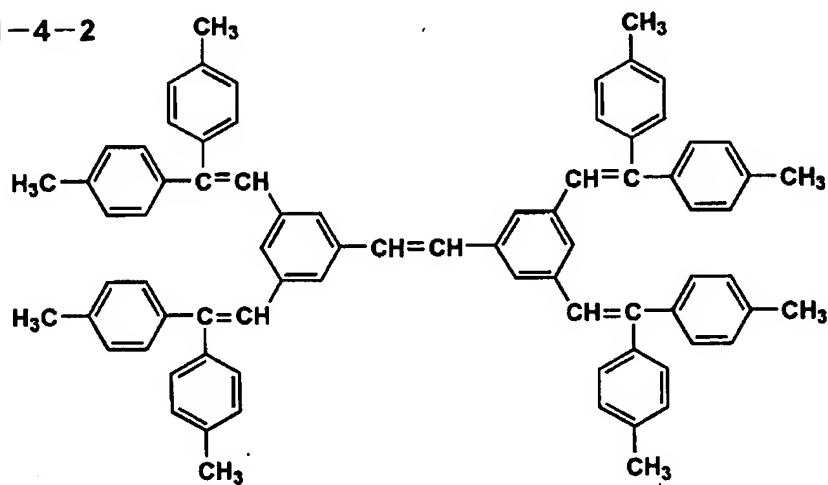
40

C1-4-1



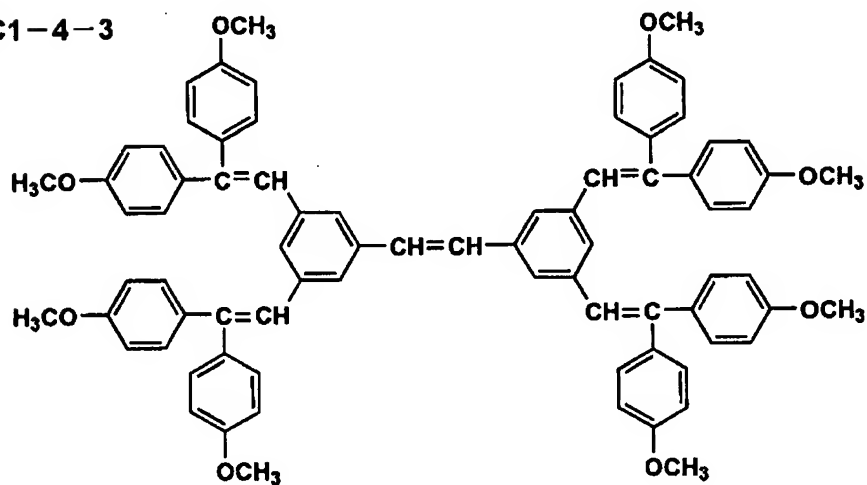
10

C1-4-2



20

C1-4-3



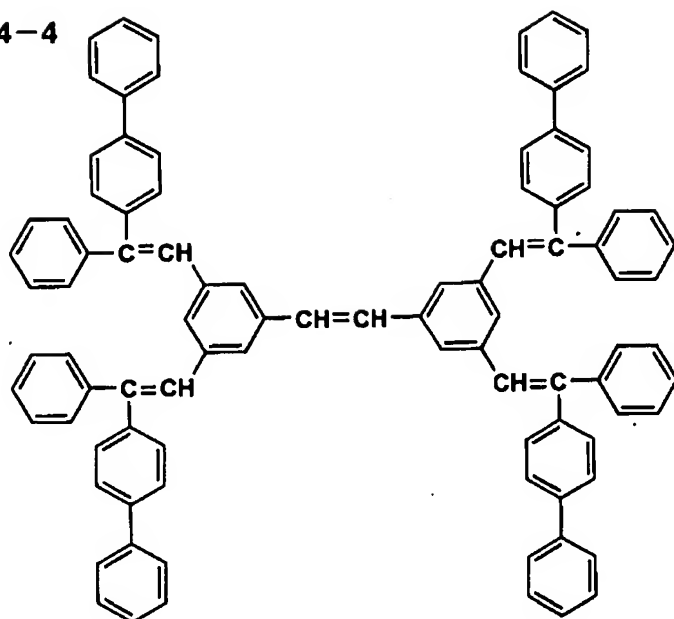
30

40

【 0 4 7 5 】

【 化 3 3 4 】

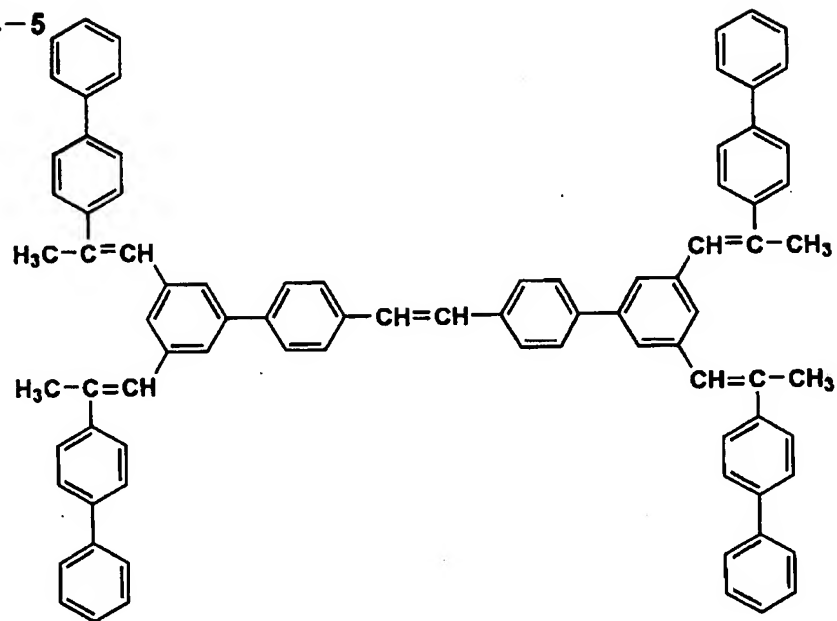
C1-4-4



10

20

C1-4-5



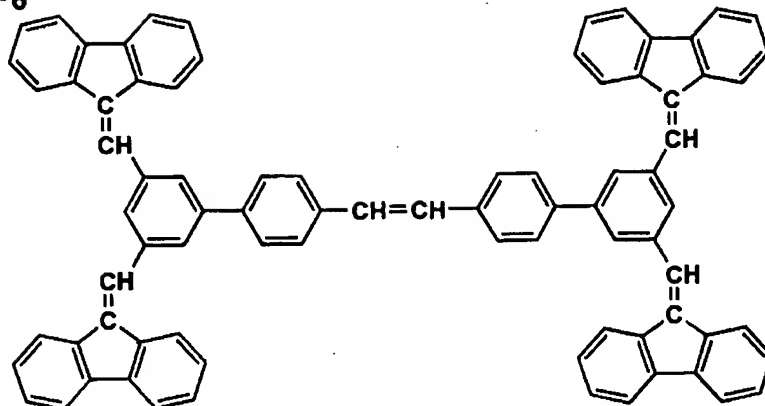
30

40

【 0 4 7 6 】

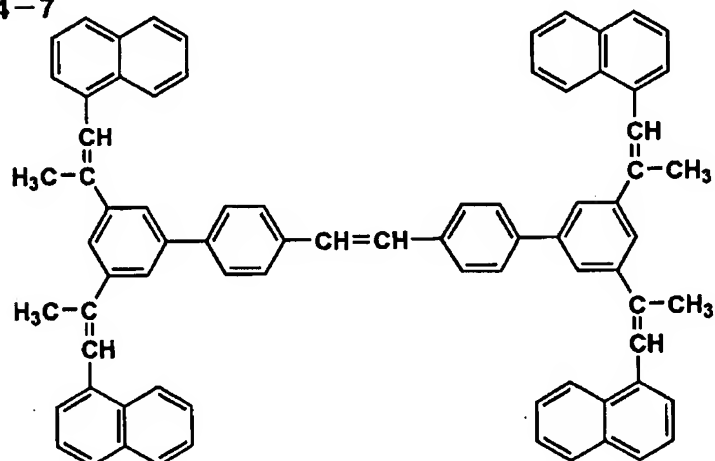
【 化 3 3 5 】

C1-4-6



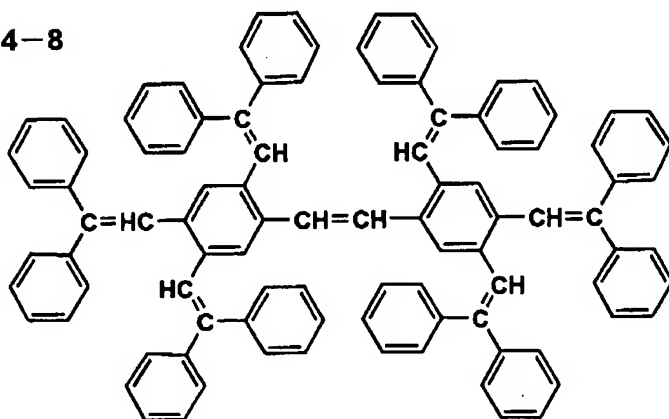
10

C1-4-7



20

C1-4-8



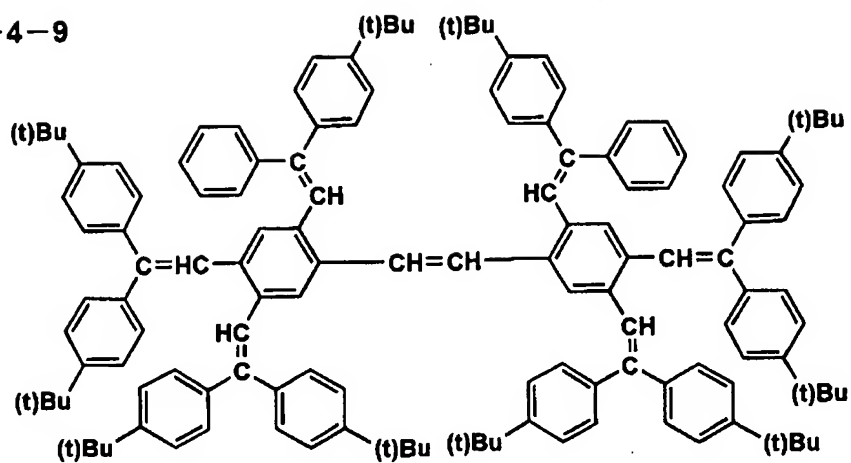
30

40

【 0 4 7 7 】

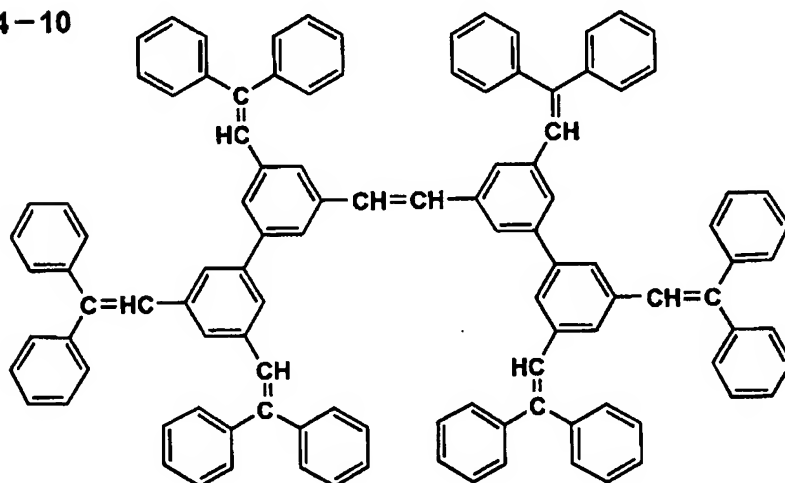
【 化 3 3 6 】

C1-4-9



10

C1-4-10



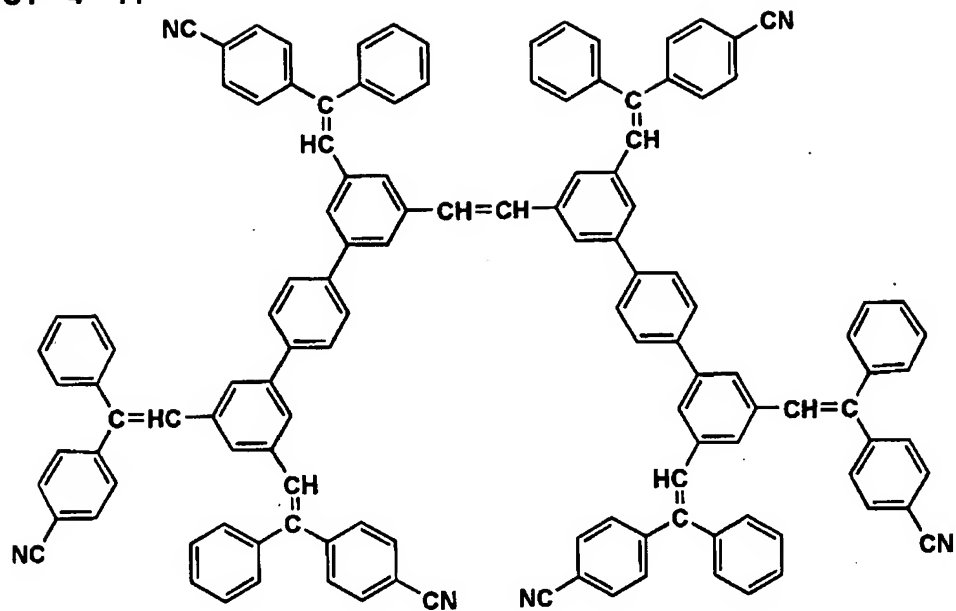
20

30

【 0 4 7 8 】

【 化 3 3 7 】

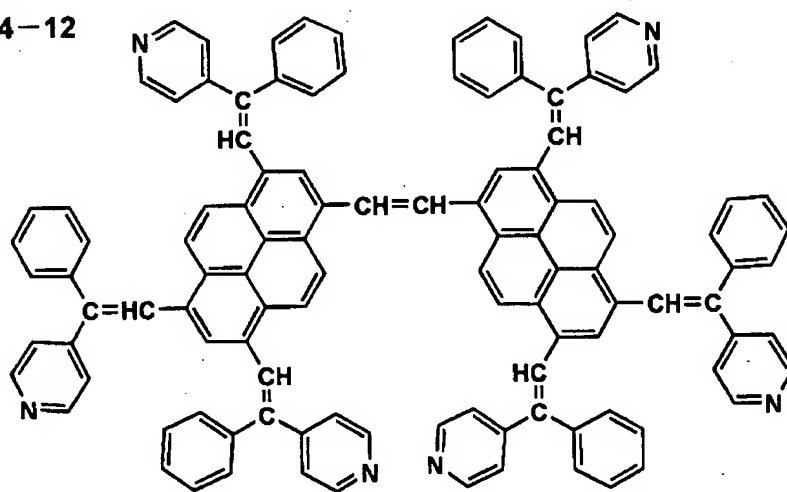
C1-4-11



10

20

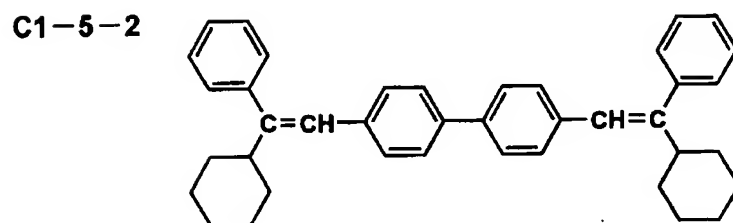
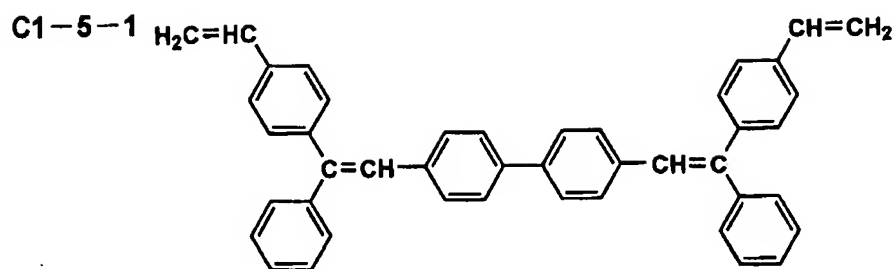
C1-4-12



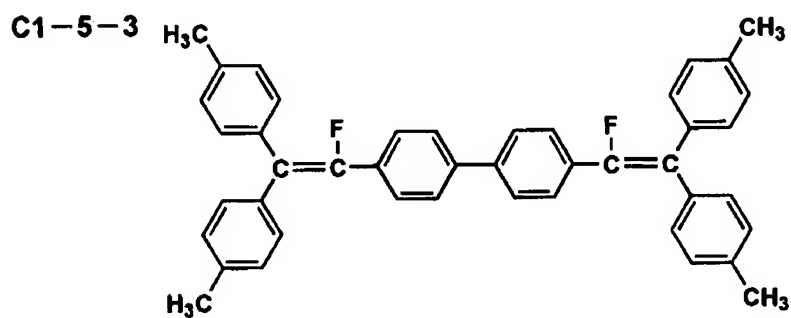
30

【 0 4 7 9 】

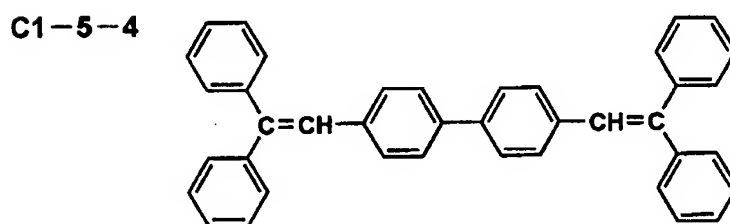
【 化 3 3 8 】



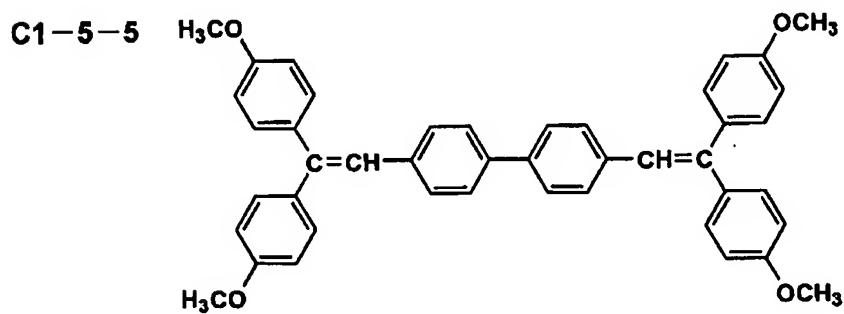
10



20



30

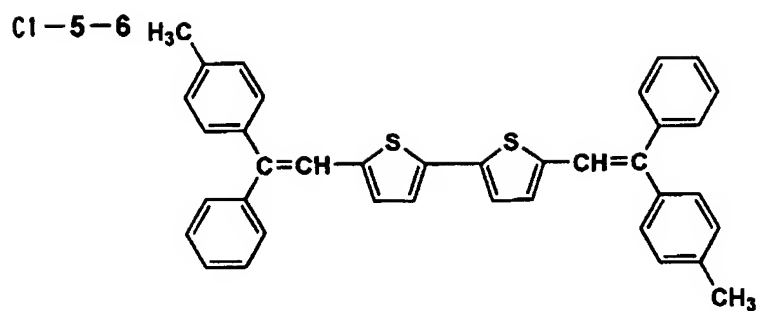


40

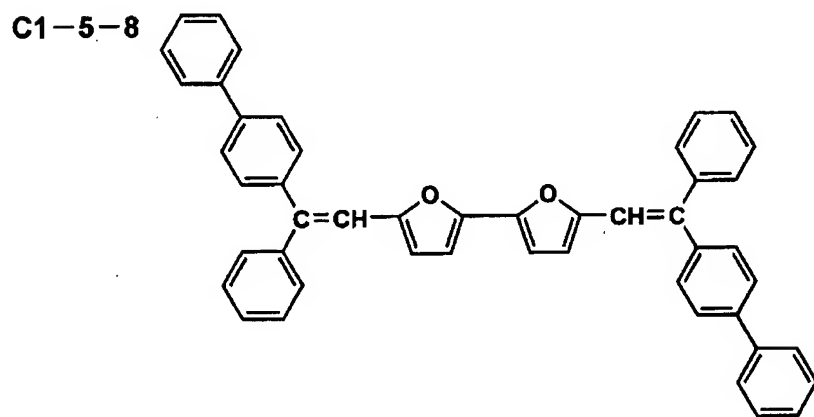
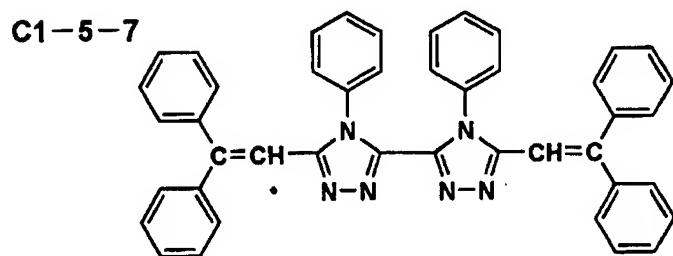
【 0 4 8 0 】

【 化 3 3 9 】

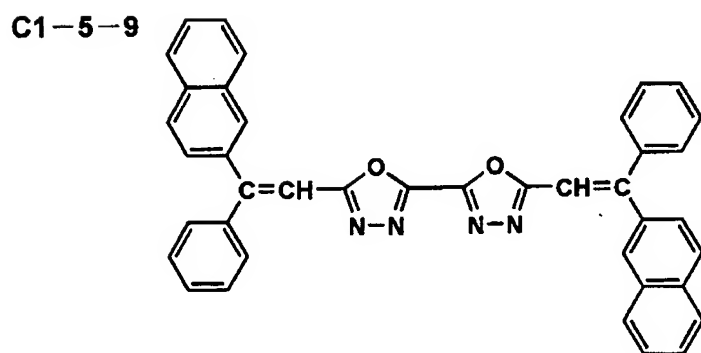




10



30

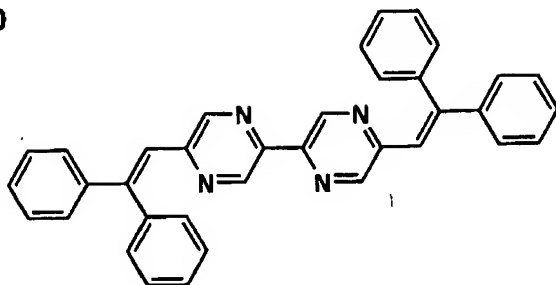


40

【 0 4 8 1 】

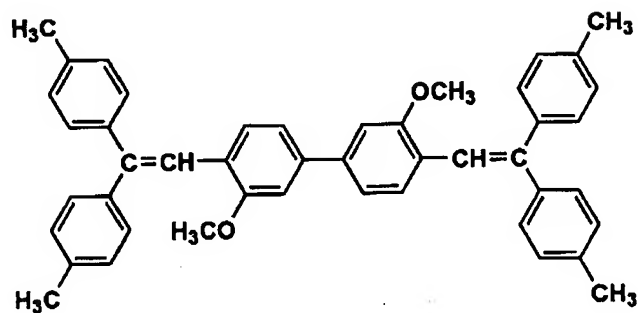
【 化 3 4 0 】

C1-5-10



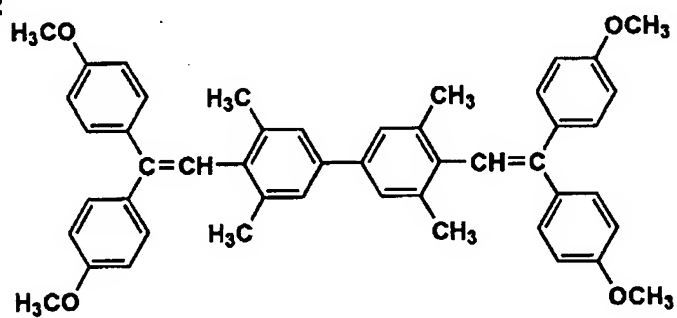
10

C1-5-11



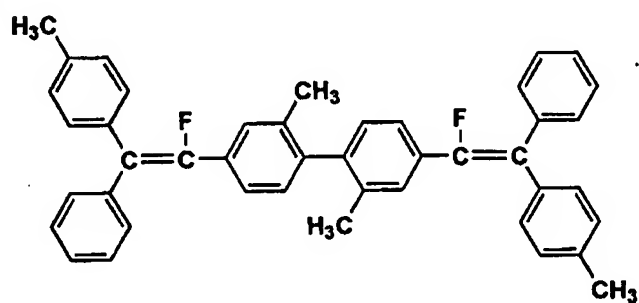
20

C1-5-12



30

C1-5-13

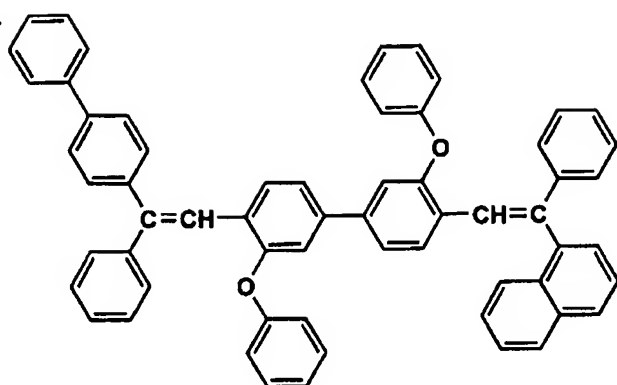


40

【 0 4 8 2 】

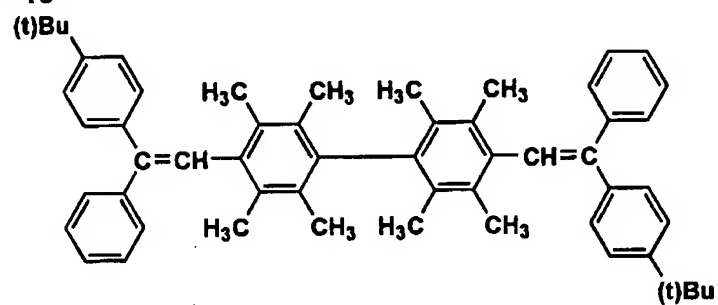
【 化 3 4 1 】

C1-5-14



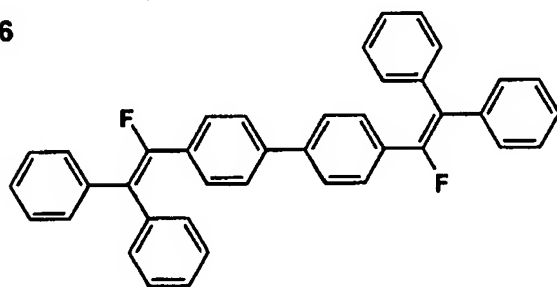
10

C1-5-15



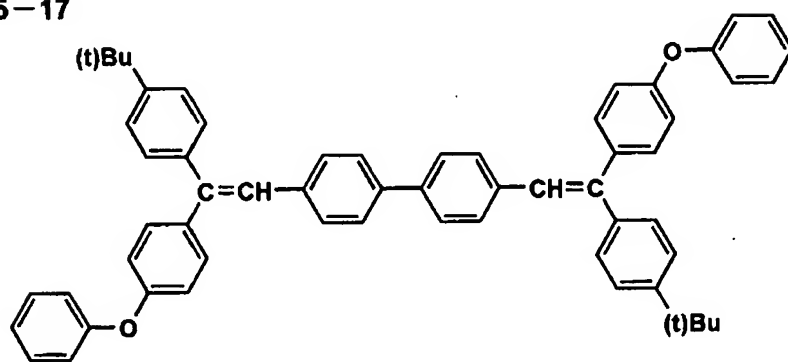
20

C1-5-16



30

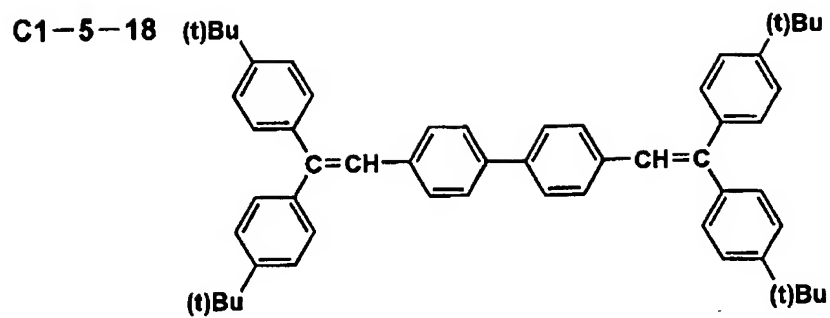
C1-5-17



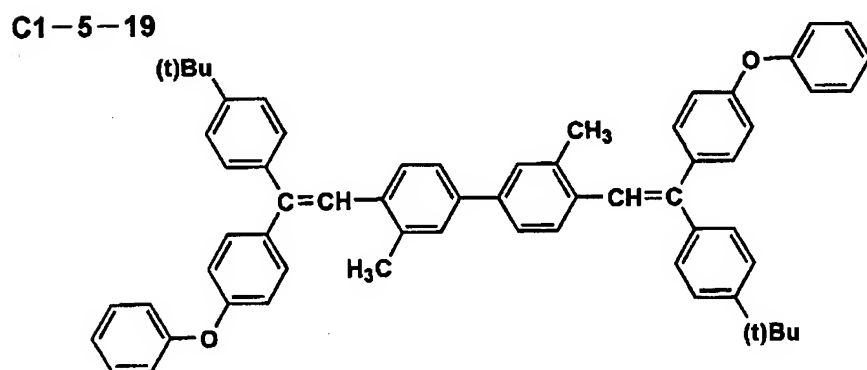
40

【 0 4 8 3 】

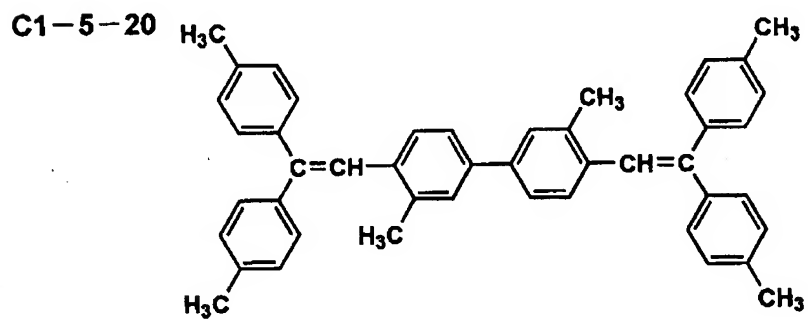
【 化 3 4 2 】



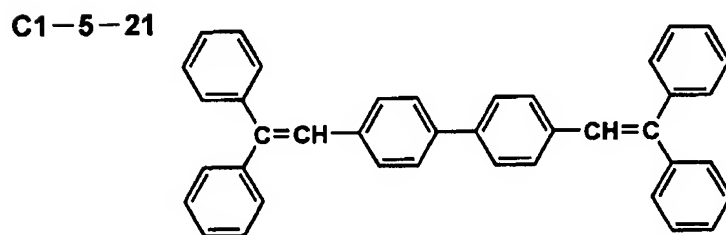
10



20



30

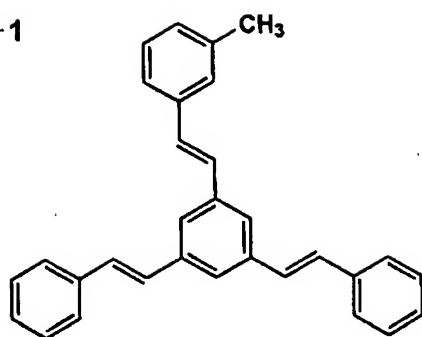


40

【 0 4 8 4 】

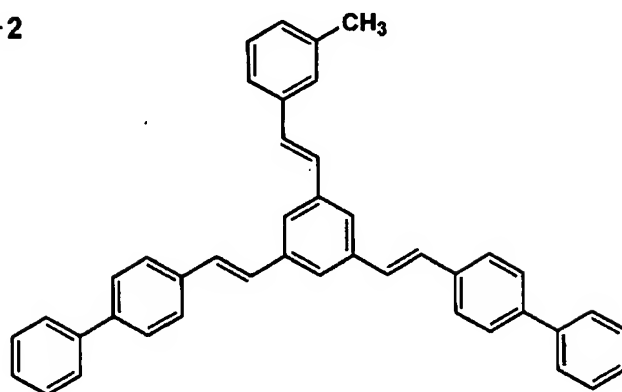
【 化 3 . 4 3 】

C1-6-1



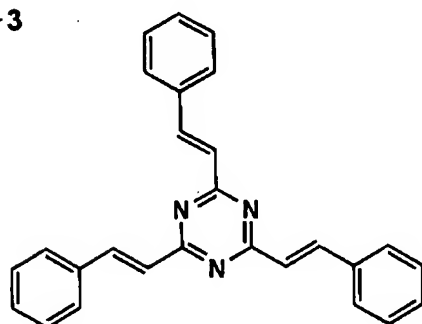
10

C1-6-2



20

C1-6-3



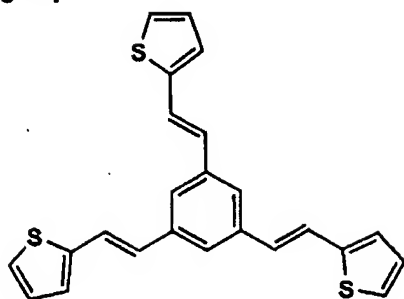
30

【 0 4 8 5 】

【 化 3 . 4 4 】

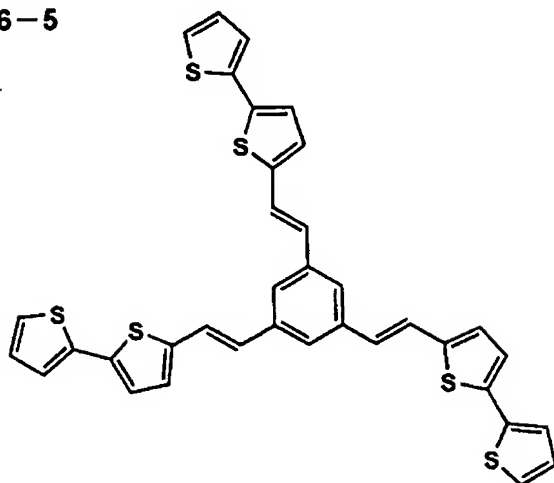
40

C1-6-4



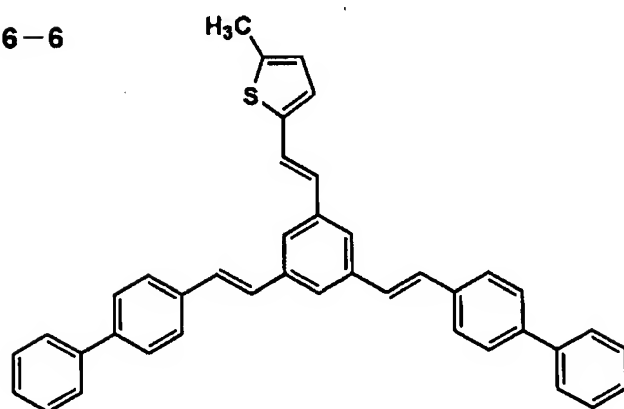
10

C1-6-5



20

C1-6-6



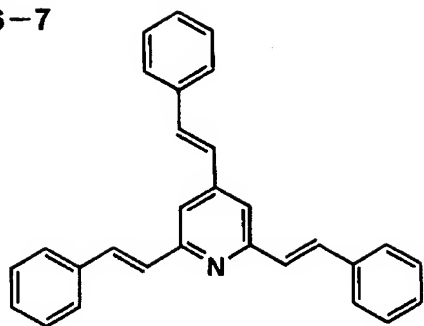
30

40

【 0 4 8 6 】

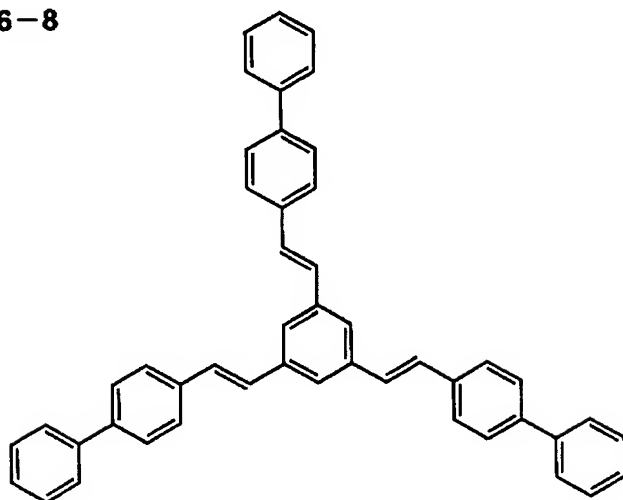
【 化 3 4 5 】

C1-6-7



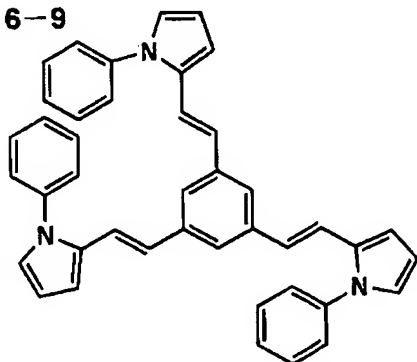
10

C1-6-8



20

C1-6-9



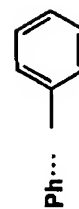
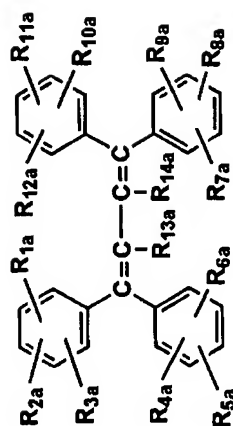
30

40

【 0 4 8 7 】

【 化 3 4 6 】

No.	R <sub>1a</sub>	R <sub>2a</sub>	R <sub>3a</sub>	R <sub>4a</sub>	R <sub>5a</sub>	R <sub>6a</sub>	R <sub>7a</sub>	R <sub>8a</sub>	R <sub>9a</sub>	R <sub>10a</sub>	R <sub>11a</sub>	R <sub>12a</sub>	R <sub>13a</sub>	R <sub>14a</sub>
C1-7-1	p-CH <sub>3</sub>	H	H	p-CH <sub>3</sub>	H	H	p-CH <sub>3</sub>	H	H	p-CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C1-7-2	m-CH <sub>3</sub>	H	H	m-CH <sub>3</sub>	H	H	m-CH <sub>3</sub>	H	H	m-CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C1-7-3	o-CH <sub>3</sub>	H	H	o-CH <sub>3</sub>	H	H	o-CH <sub>3</sub>	H	H	o-CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C1-7-4	p-Ph	H	H	p-Ph	H	H	p-Ph	H	H	p-Ph	H	H	H	H
C1-7-5	p-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	p-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	p-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	p-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
C1-7-6	p-t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	p-t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	p-t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	p-t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
C1-7-7	p-n-C <sub>12</sub> H <sub>25</sub>	H	H	p-n-C <sub>12</sub> H <sub>25</sub>	H	H	p-n-C <sub>12</sub> H <sub>25</sub>	H	H	p-n-C <sub>12</sub> H <sub>25</sub>	H	H	H	H
C1-7-8	p-CH <sub>3</sub>	o-CH <sub>3</sub>	H	p-CH <sub>3</sub>	o-CH <sub>3</sub>	H	p-CH <sub>3</sub>	o-CH <sub>3</sub>	H	p-CH <sub>3</sub>	o-CH <sub>3</sub>	H	H	H
C1-7-9	p-OCH <sub>3</sub>	H	H	p-OCH <sub>3</sub>	H	H	p-OCH <sub>3</sub>	H	H	p-OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C1-7-10	p-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	p-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	p-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	p-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
C1-7-11	p-N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	p-N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	p-N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	p-N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
C1-7-12	p-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	p-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
C1-7-13	p-CH <sub>3</sub>	H	H	p-CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
C1-7-14	p-OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	p-OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	p-OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	p-OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H



[ 0 4 8 8 ]  
[ 化 3 4 7 ]

10

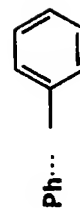
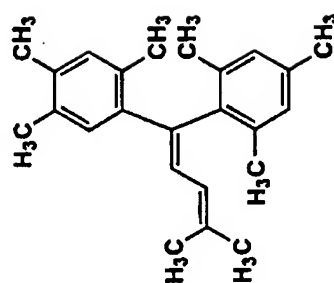
20

30

40



No.	R <sub>1a</sub>	R <sub>2a</sub>	R <sub>3a</sub>	R <sub>4a</sub>	R <sub>5a</sub>	R <sub>6a</sub>	R <sub>7a</sub>	R <sub>8a</sub>	R <sub>9a</sub>	R <sub>10a</sub>	R <sub>11a</sub>	R <sub>12a</sub>	R <sub>13a</sub>	R <sub>14a</sub>
C1-7-15	o-CH <sub>3</sub>	H	H	o-CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
C1-7-16	p-Ph	H	H	p-Ph	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
C1-7-17	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C1-7-18	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>
C1-7-19	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	Ph	Ph
C1-7-20	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H	Cl	Cl
C1-7-21	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H
C1-7-22	p-CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	p-CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	H
C1-7-23	p-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	p-OCH <sub>3</sub>	H	H	p-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	p-OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C1-7-24	p-CH <sub>3</sub>	H	H	p-OCH <sub>3</sub>	H	H	p-CH <sub>3</sub>	H	H	p-OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C1-7-25	p-N(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	p-OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
C1-7-26														



[ 0 4 8 9 ]  
[ 化 3 4 8 ]

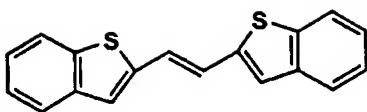
10

20

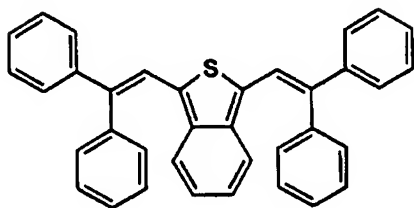
30

40

C1-8-1

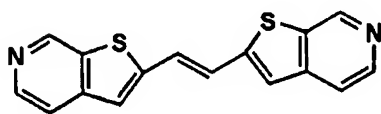


C1-8-2

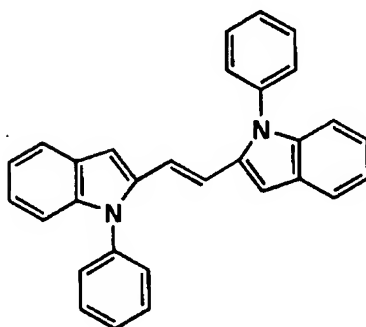


10

C1-8-3

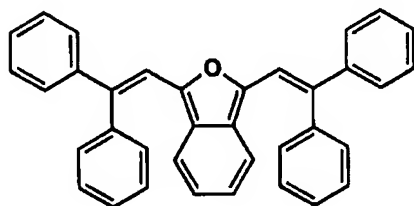


C1-8-4



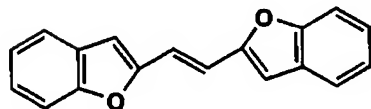
20

C1-8-5



30

C1-8-6

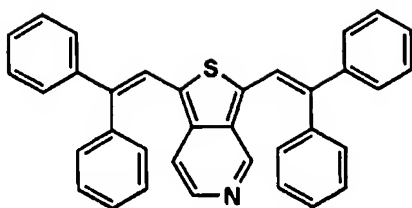


40

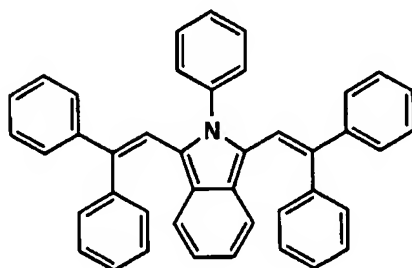
【 0 4 9 0 】

【 化 3 4 9 】

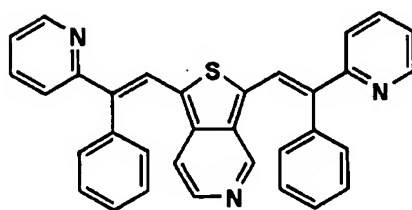
C1-8-7



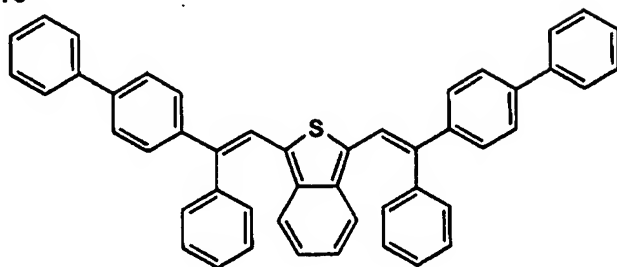
C1-8-8



C1-8-9



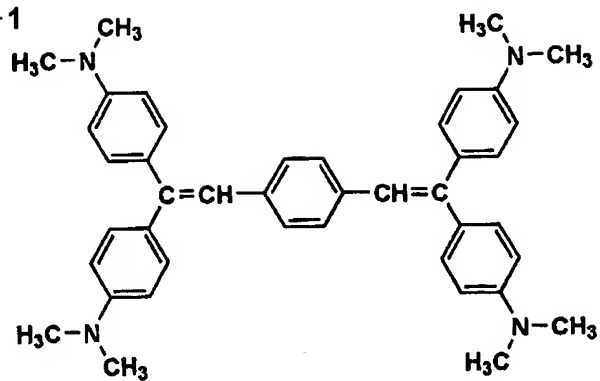
C1-8-10



【 0 4 9 1 】

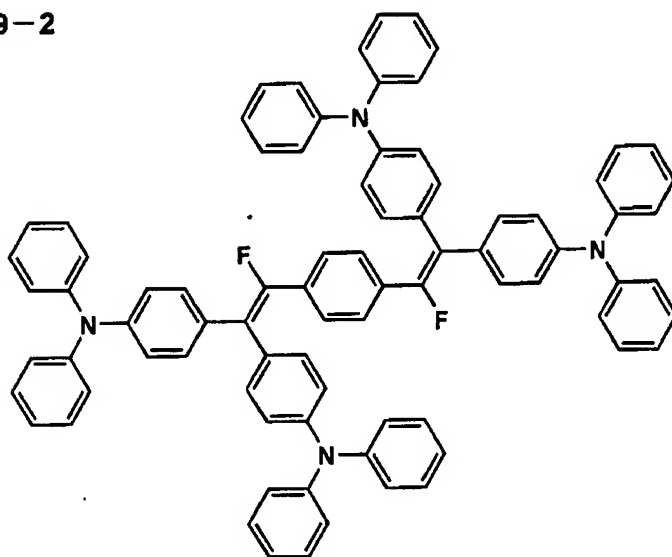
【 化 3 5 0 】

C1-9-1

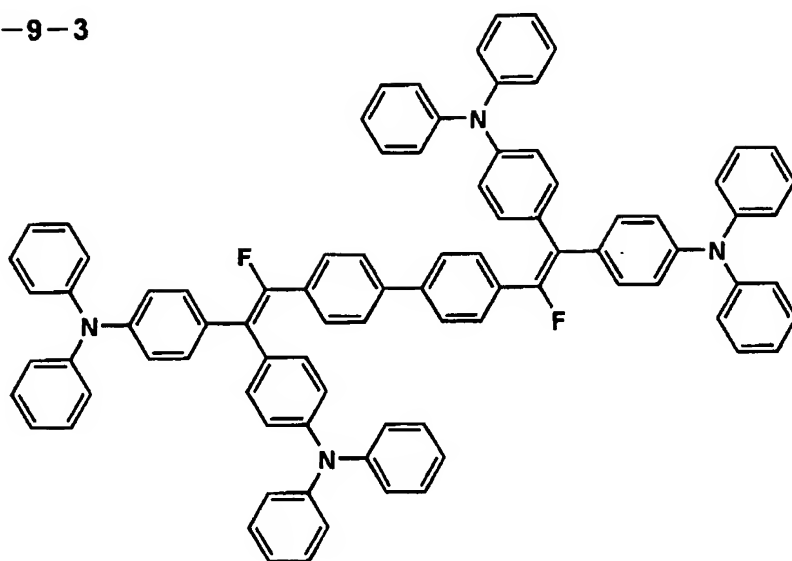


10

C1-9-2

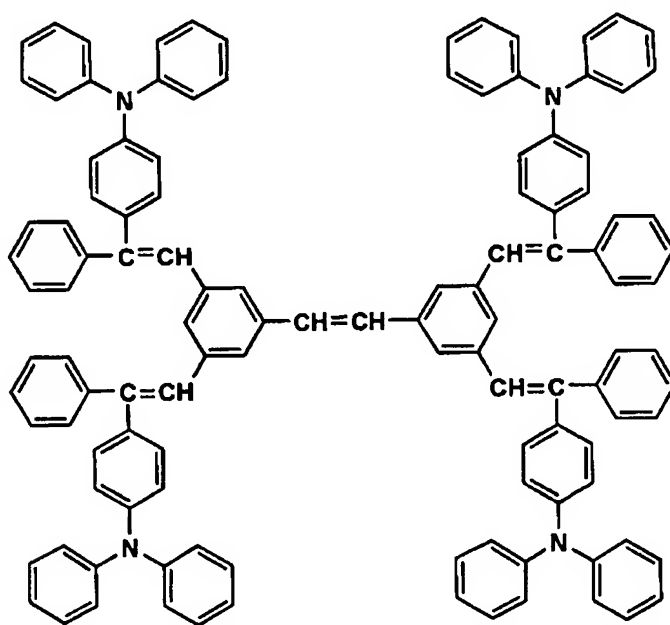


C1-9-3



10

C1-9-4



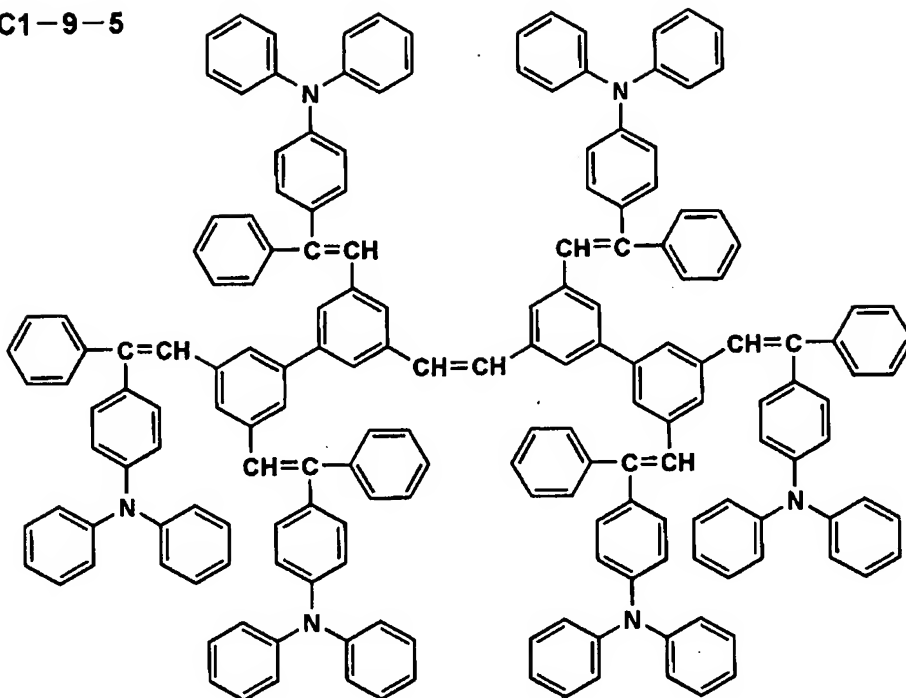
20

30

【 0 4 9 3 】  
【 化 3 5 2 】

40

C1-9-5



10

20

【0494】

これらの化合物は、固体状態において強い蛍光を持つ化合物であり、電場発光性にも優れており、発光材料として有効に使用できる。

【0495】

これらの化合物は、従来既知の方法で合成できる。例えば、登録特許第3086272号や登録特許第3214674号等に詳しい。

30

【0496】

一般式(C2-1)で表される化合物について説明する。

【0497】

一般式(C2-1)において、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $X_1$ 及び $Y_1$ は水素原子または一価の置換基を表し、 $Z_1$ は $CR_{15}R_{16}$ 、 $O$ 、 $S$ 、 $SiR_{17}R_{18}$ を表す。 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$ 及び $R_{18}$ は水素原子または一価の置換基を表す。

【0498】

$R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $X_1$ 、 $Y_1$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$ 、 $R_{18}$ の一価の置換基としては、アルキル基(メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アリール基(フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基等)、アルキルオキシ基(メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(フェノキシ基等)、アルキルチオ基(メチルチオ基、エチルチオ基、*i*-プロピルチオ基等)、アリールチオ基(フェニルチオ基等)、ハロゲン原子(フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基(ピロール基、ピリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジン基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)、芳香族基等が挙げられる。芳香族基としては上記アリール基及びヘテロアリール基(ピロール基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジン基等)が挙げられる。隣接する置換基同士は環を形成してもよい。好ましくは、 $Z_1$ が $O$ または $SiR_{17}R_{18}$ のときであり、一価の

40

50

置換基の好ましい例としては、アルキル基または芳香族基である。

【0499】

本発明の化合物は、固体状態において強い蛍光を持つ化合物であり、電場発光性にも優れており、発光材料として有効に使用できる。また、金属電極からの優れた電子注入性及び電子輸送性に非常に優れているため、他の発光材料を用いた有機EL素子に電子輸送材料として使用した場合、優れた発光効率を示す。

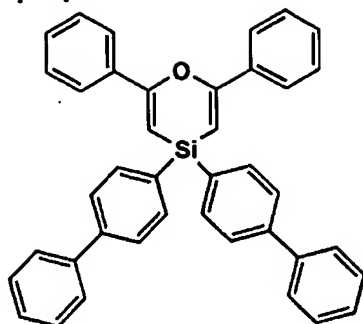
【0500】

以下に具体的な化合物の例を挙げるが、本発明は、これらに限定されるものではない。

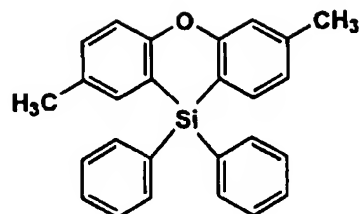
【0501】

【化353】

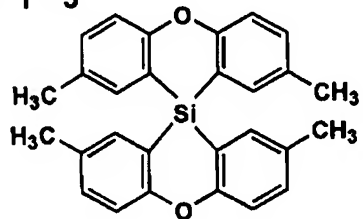
C2-1-1



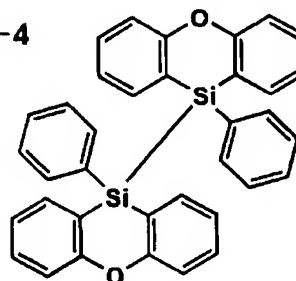
C2-1-2



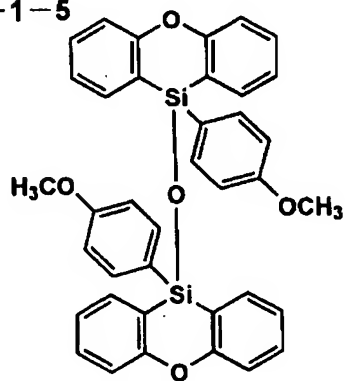
C2-1-3



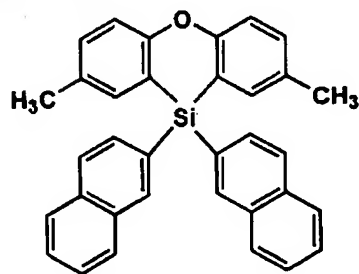
C2-1-4



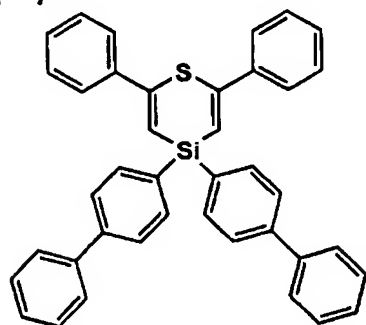
C2-1-5



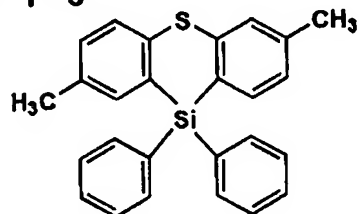
C2-1-6



C2-1-7



C2-1-8



[ 0 5 0 2 ]  
[ 化 3 5 4 ]

10

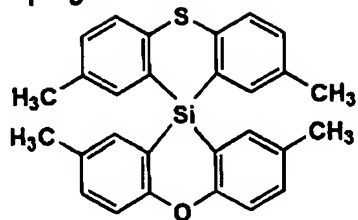
20

30

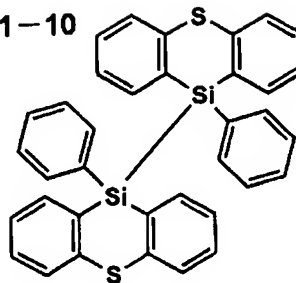
40



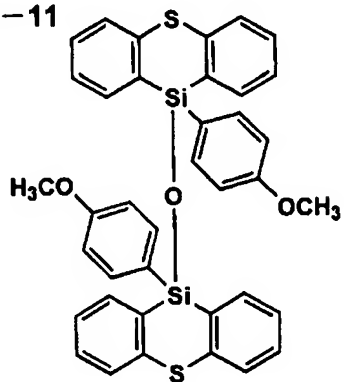
C2-1-9



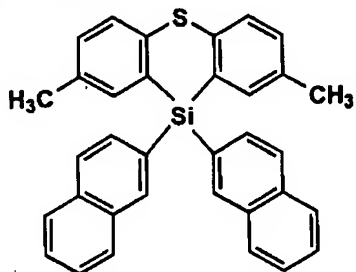
C2-1-10



C2-1-11

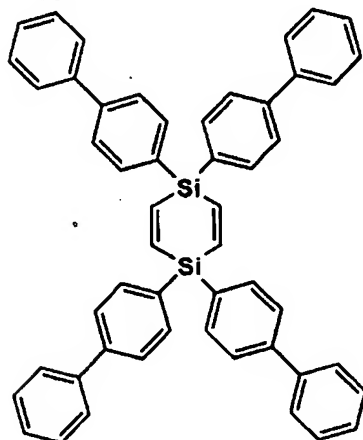


C2-1-12

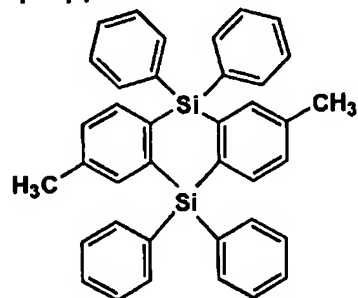


10

C2-1-13



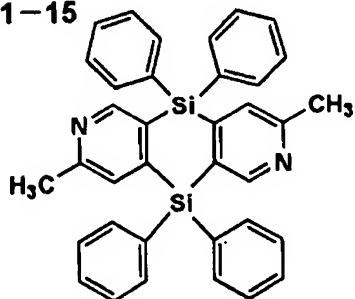
C2-1-14



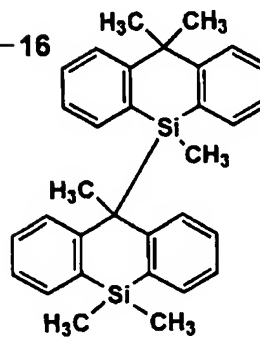
20

30

C2-1-15



C2-1-16

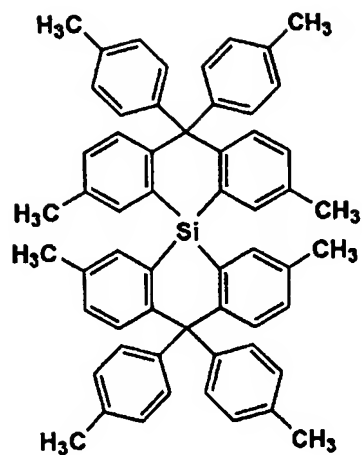


40

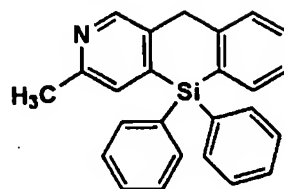
[ 0 5 0 3 ]

[ 化 3 5 5 ]

C2-1-17

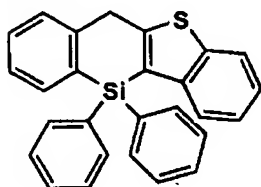


C2-1-18

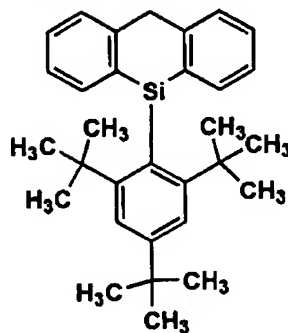


10

C2-1-19



C2-1-20

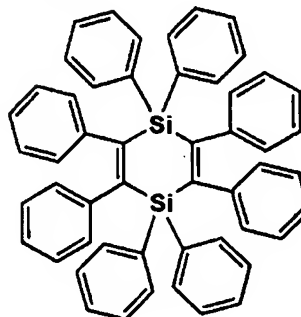


20

C2-1-21



C2-1-22



30

40

## 【0504】

本発明のホスト化合物は分子内にけい素原子を含有する化合物であり、好ましい化合物としては、前記一般式 (C2-2) または一般式 (C2-3) で表される繰り返し構造単位を有するポリシラン、また前記一般式 (C2-4) ~ (C2-7) で表される化合物があげられる。

## 【0505】

前記一般式 (C2-2) において、 $R_{21}$  及び  $R_{22}$  はアルキル基、芳香族基、アルコキ

50

シ基またはアリールオキシ基である。 $R_{21}$  及び  $R_{22}$  で表されるアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等が挙げられ、芳香族基の例としては、フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基、ピロール基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル等が挙げられる。アルコキシ基の例としては、メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等が挙げられ、アリールオキシ基としてはフェノキシ基等が挙げられる。 $n$  は 3 以上の整数を表す。

#### 【0506】

また、前記一般式 (C2-3) において  $R_{31}$  は一般式 (C2-2) 中の  $R_{21}$  と同義であり、 $Ar_{31}$  はアリーレン基を表す。 $Ar_{31}$  で表されるアリーレン基の例としては、例えば 1, 4-フェニレン、1, 5-ナフチレン基が挙げられ、 $R_{32}$ 、 $R_{33}$  はそれぞれ独立に、アルキル基、芳香族基を表す。 $R_{32}$ 、 $R_{33}$  で表されるアルキル基及び芳香族基は、前記  $R_{21}$  で表されるアルキル基及び芳香族基と同義である。

#### 【0507】

次に前記一般式 (C2-4) で表される化合物について説明する。一般式 (C2-4) において  $R_{41}$ 、 $R_{42}$ 、 $R_{43}$  及び  $R_{44}$  は一価の置換基であり、少なくとも 1 個は芳香族基を表す。一価の置換基としては、アルキル基 (メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アリール基 (フェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基等)、アルキルオキシ基 (メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基 (フェノキシ基等)、アルキルチオ基 (メチルチオ基、エチルチオ基、*i*-プロピルチオ基等)、アリールチオ基 (フェニルチオ基等)、ハロゲン原子 (フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基 (ピロール基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等) 等が挙げられる。芳香族基としては、上記アリール基及びヘテロアリール基 (ピロール基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基等) が挙げられる。好ましくは、 $R_{41}$ 、 $R_{42}$ 、 $R_{43}$  及び  $R_{44}$  がすべて芳香族基である時である。一般式 (C2-4) において好ましくは全てが芳香族基である時であり、より好ましくは  $R_{41}$ 、 $R_{42}$ 、 $R_{43}$  及び  $R_{44}$  の少なくとも 1 つが縮合芳香族基であるときである。

#### 【0508】

次に一般式 (C2-5) について説明する。 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ 、 $X_5$  及び  $Y_5$  はそれぞれ独立に水素原子または一価の置換基を表す。 $Z_{51}$ 、 $Z_{52}$  はそれぞれ独立に窒素原子または  $CR_{53}$  を表し、 $R_{53}$  は水素原子または一価の置換基を表す。一価の置換基の例としては  $R_{41}$  で表される置換基と同様の置換基が挙げられる。隣接する置換基同士は環を形成してもよい。

#### 【0509】

また、一般式 (C2-6) において  $R_{61}$ 、 $R_{62}$ 、 $R_{63}$ 、 $R_{64}$ 、 $R_{65}$ 、 $R_{66}$ 、 $R_{67}$ 、 $R_{68}$ 、 $X_6$  及び  $Y_6$  は水素原子または一価の置換基を表し、一価の置換基の例としては  $R_{61}$  で表される置換基と同様の置換基が挙げられる。

#### 【0510】

次に一般式 (C2-7) について説明する。 $R_{71}$ 、 $R_{72}$ 、 $R_{73}$ 、 $R_{74}$ 、 $X_7$  及び  $Y_7$  は水素原子または一価の置換基を表す。一価の置換基の例としては  $R_{41}$  で表された置換基と同様の置換基が挙げられる。 $Z_7$  は  $CR_{75}R_{76}$ 、 $NR_{77}$ 、 $O$ 、 $S$  または  $SiR_{78}R_{79}$  を表す。 $R_{75}$ 、 $R_{76}$ 、 $R_{77}$ 、 $R_{78}$  及び  $R_{79}$  は水素原子または一価の置換基を表す。一価の置換基の例としては  $R_{41}$  で表される置換基と同様の置換基が挙げられる。好ましくは  $Z_7$  が  $CR_{75}R_{76}$ 、 $O$  または  $SiR_{78}R_{79}$  である。

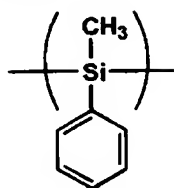
#### 【0511】

以下に、具体的化合物例を示すが、本発明の化合物はこれらに限定されるものではない。

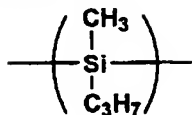
【 0 5 1 2 】

【 化 3 5 6 】

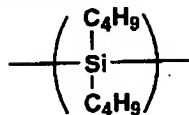
C2-2-1

 $M_n = 15600$ 

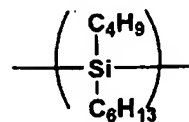
C2-2-2

 $M_n = 23200$ 

C2-2-3

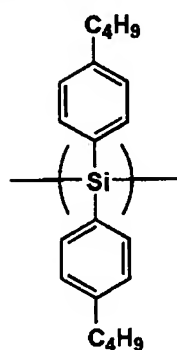
 $M_n = 21100$ 

C2-2-4

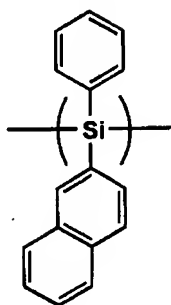
 $M_n = 26800$ 

10

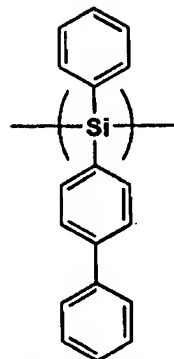
C2-2-5

 $M_n = 21400$ 

C2-2-6

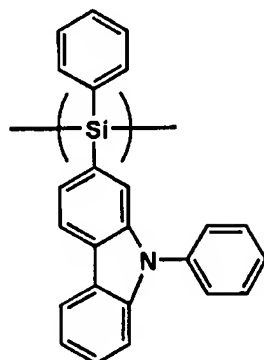
 $M_n = 19500$ 

C2-2-7

 $M_n = 18700$ 

20

C2-2-8

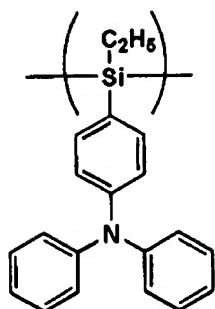
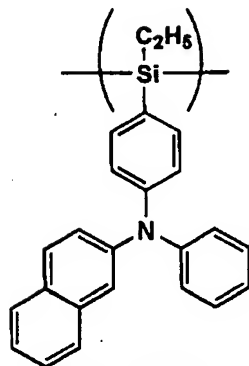
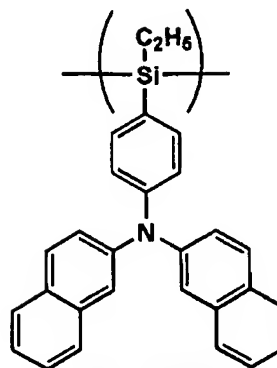
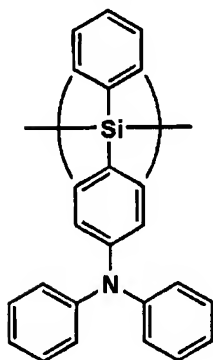
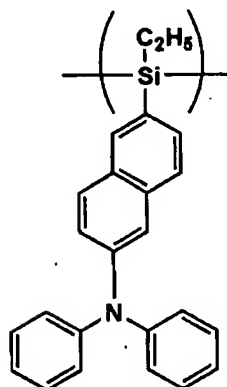
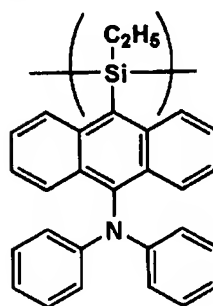
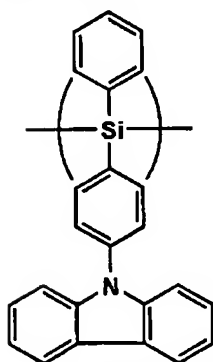
 $M_n = 19200$ 

30

40

【 0 5 1 3 】

【 化 3 5 7 】

**C2-3-1****M<sub>n</sub> = 24300****C2-3-2****M<sub>n</sub> = 23300****C2-3-3****M<sub>n</sub> = 23800****C2-3-4****M<sub>n</sub> = 22000****C2-3-5****M<sub>n</sub> = 19800****C2-3-6****M<sub>n</sub> = 18500****C2-3-7****M<sub>n</sub> = 21800**

【 0 5 1 4 】

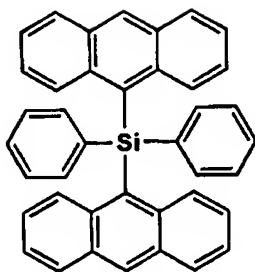
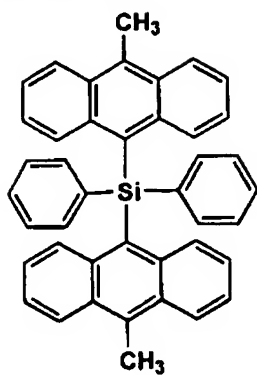
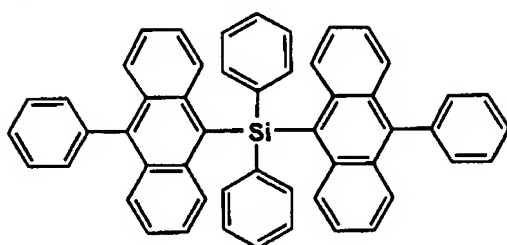
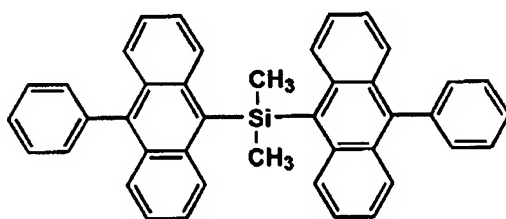
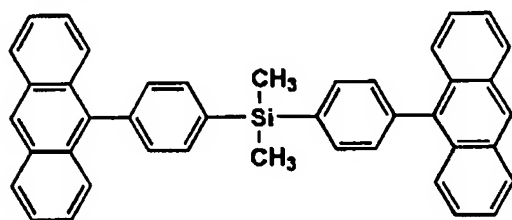
【 化 3 5 8 】

10

20

30

40

**C2-4-1****C2-4-2****C2-4-3****C2-4-4****C2-4-5**

【 0 5 1 5 】

【 化 3 5 9 】

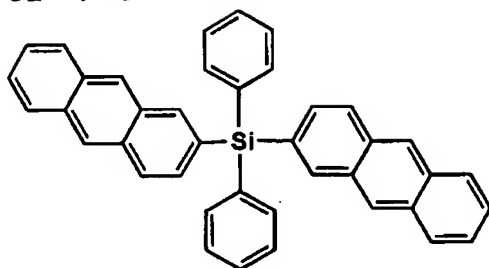
10

20

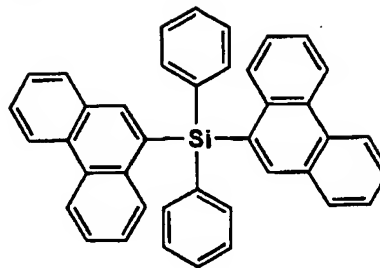
30

40

C2-4-6

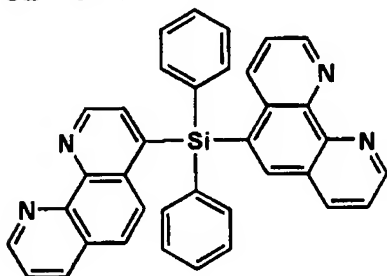


C2-4-7

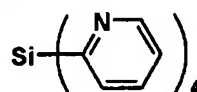


10

C2-4-8

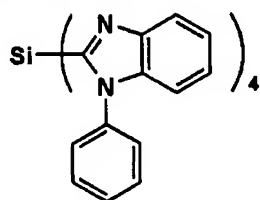


C2-4-9

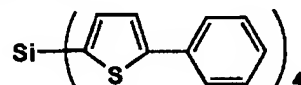


20

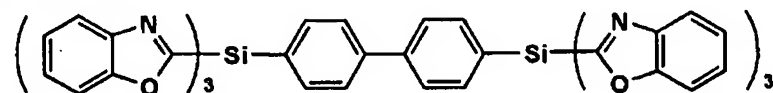
C2-4-10



C2-4-11

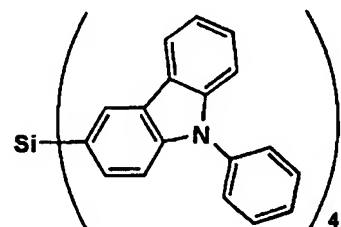


C2-4-12

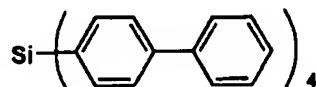


30

C2-4-13



C2-4-14

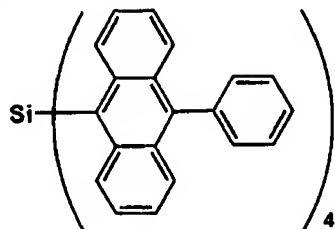


40

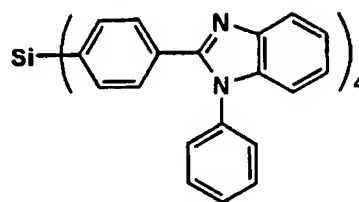
【 0 5 1 6 】

【 化 3 6 0 】

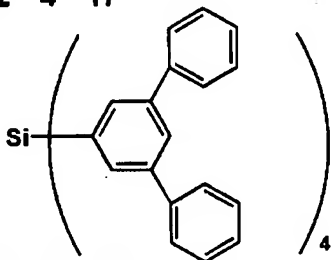
C2-4-15



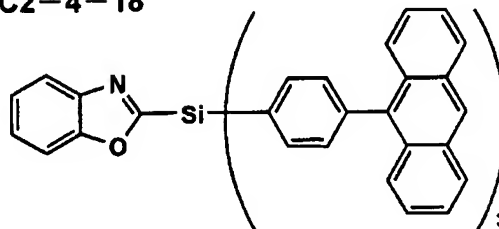
C2-4-16



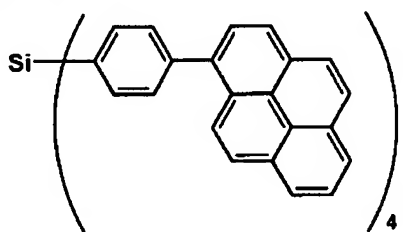
C2-4-17



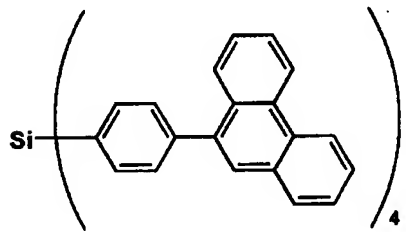
C2-4-18



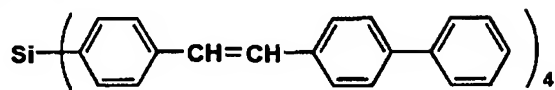
C2-4-19



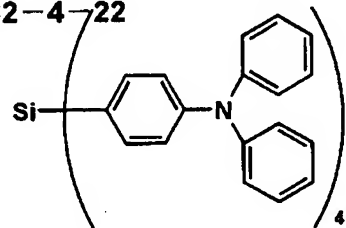
C2-4-20



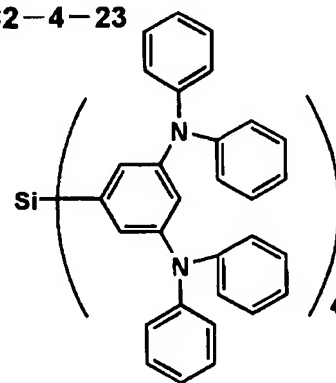
C2-4-21



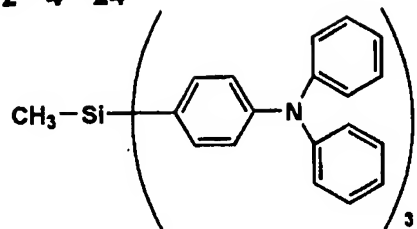
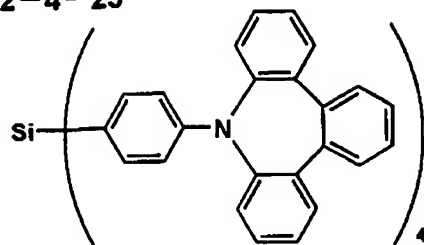
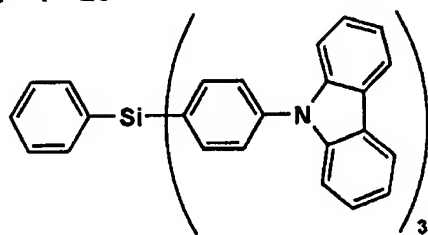
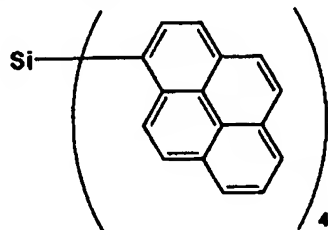
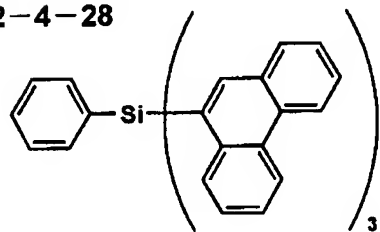
C2-4-22



C2-4-23





**C2-4-24****C2-4-25****C2-4-26****C2-4-27****C2-4-28**

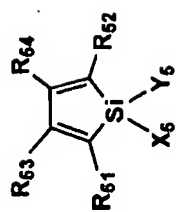
【 0 5 1 8 】

【 化 3 6 2 】

10

20

30



化合物No.	R <sub>61</sub>	R <sub>63</sub>	R <sub>64</sub>	R <sub>52</sub>	X <sub>5</sub>	Y <sub>5</sub>
C2-5-1						
C2-5-2						
C2-5-3						
C2-5-4						
C2-5-5						

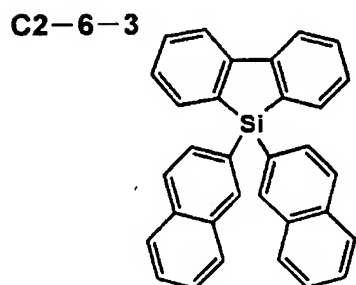
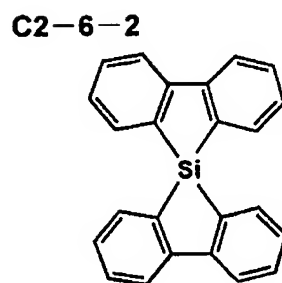
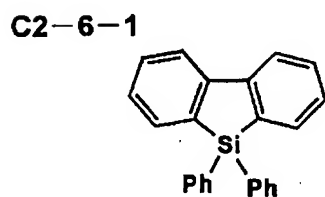
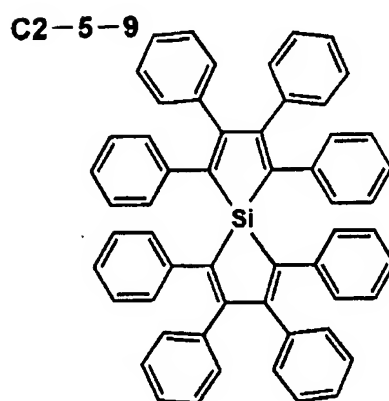
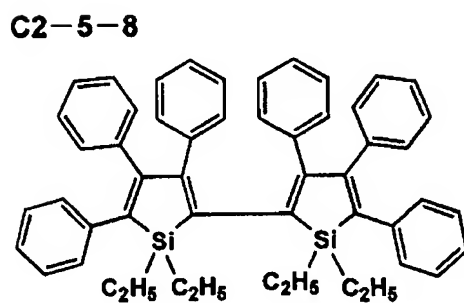
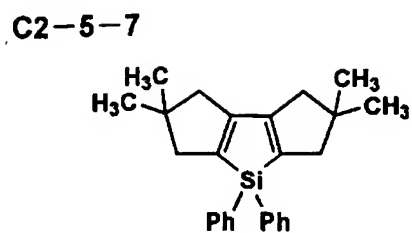
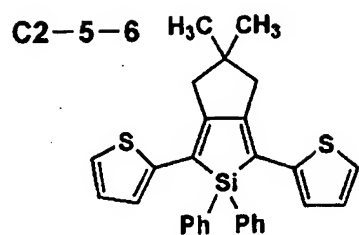
10

20

30

40

【 0 5 1 9 】  
 【 化 3 6 3 】



[ 0 5 2 0 ]  
[ 化 3 6 4 ]

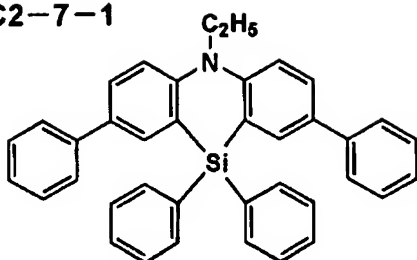
10

20

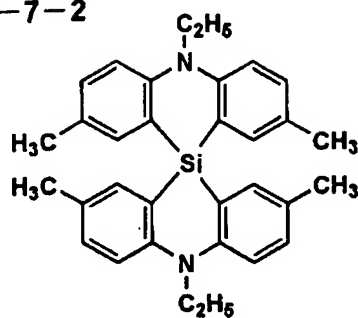
30

40

C2-7-1

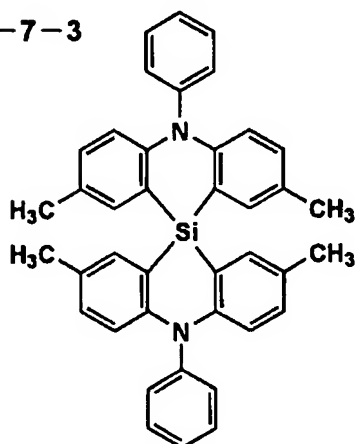


C2-7-2



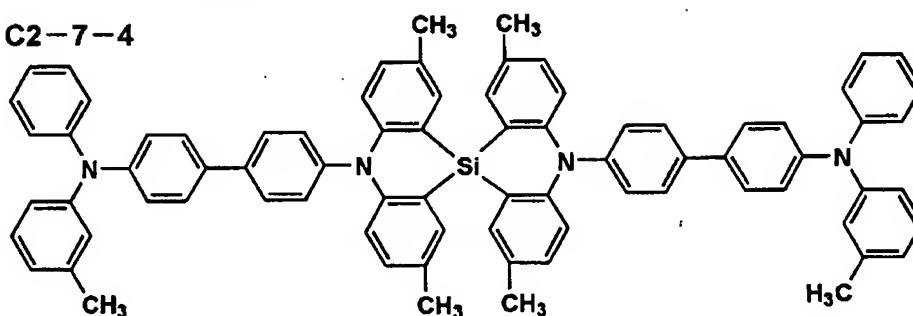
10

C2-7-3



20

C2-7-4



30

## 【0521】

一般式 (C2-7) で表される化合物の例としては、上記化合物 C2-7-1 ~ C2-7-4 以外に前記化合物 C2-1-1 ~ C2-1-22 が含まれる。

## 【0522】

以下に、本発明の一般式 (C3-1) 乃至一般式 (C3-4) で表される化合物について

40

## 【0523】

一般式 (C3-1) 乃至一般式 (C3-4) において、Ar<sub>11</sub> 乃至 Ar<sub>16</sub>、Ar<sub>21</sub> 乃至 Ar<sub>28</sub>、Ar<sub>31</sub> 乃至 Ar<sub>40</sub>、Ar<sub>41</sub> 乃至 Ar<sub>52</sub> は各々置換基を有していても良い芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表し、それぞれ異なっても同一でも良い。芳香族炭化水素基としては、フェニル、1-ナフチル、2-ナフチル、4-ビフェニル、3-ビフェニル、9-フェナンスリル基等が挙げられ、芳香族複素環基としてはチオフェニル、キノリル、イソキノリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル基等が挙げられる。

## 【0524】

50

置換基としては特に制限はないが、好ましくはアルキル基（メチル基、エチル基、トリフルオロメチル基等）、アルコキシ基（メトキシ基等）、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子等）、アリール基（フェニル基等）が挙げられ、それぞれ結合して環を形成してもよい。

【0525】

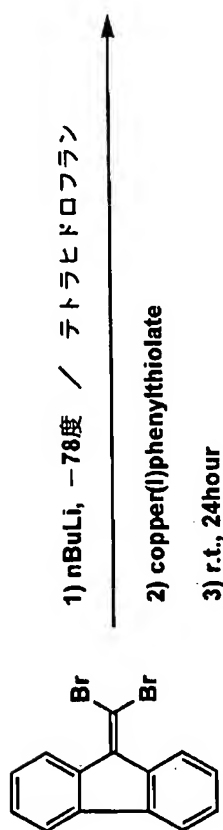
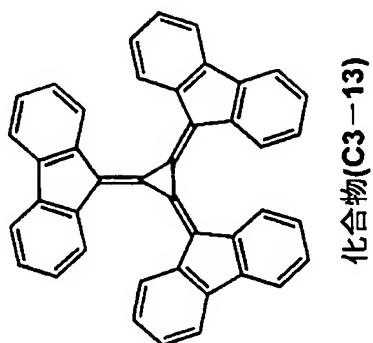
次に本発明の一般式（C3-1）乃至一般式（C3-4）で表される化合物の代表的な合成例を述べる。

【0526】

〔合成例〕 化合物（C3-13）の合成

【0527】

【化365】



【0528】

9-(ジプロモメチレン)-フルオレン2.90gを窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン40mlに溶解し、 $-90^{\circ}\text{C}$ でn-ブチルリチウム-ヘキサン(1.5mol/L)溶液を6.33ml滴下し、30分攪拌後、フェニルチオレート銅(I)を1.64g加えた後昇温し、室温で24時間攪拌した後、反応溶液を抽出、乾燥、濃縮し、カラムクロマトグラフィーで精製、再結晶することで化合物(C3-13)を1.00g(収率22%)得た。

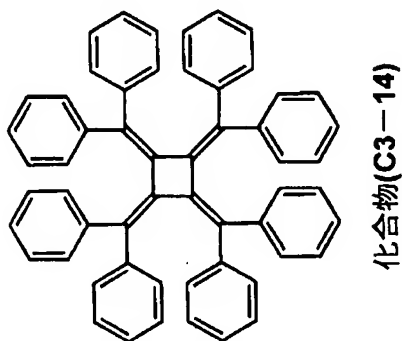
【0529】

【合成例】 化合物(C3-14)の合成

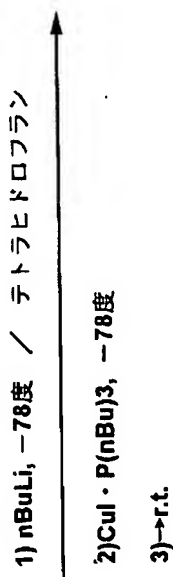
【0530】

【化366】

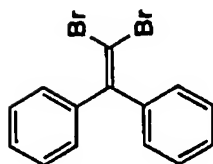
10



20



30



40

【0531】

1,1-ジブromo-2,2-ジフェニルエチレン5.00gを窒素雰囲気下脱水テトラヒ

50

ドロフラン 100 ml に溶解し、 $-90^{\circ}\text{C}$  で  $n$ -ブチルリチウム-ヘキサン ( $1.5 \text{ mol/L}$ ) 溶液を 10.8 ml 滴下し、30 分攪拌後、 $\text{CuI} \cdot \text{P}(\text{n-butyl})_3$  を 2.91 g 加えた後昇温し、室温で 24 時間攪拌した後、反応溶液を抽出、乾燥、濃縮し、カラムクロマトグラフィーで精製、再結晶することで化合物 (C3-14) を 3.59 g (収率 34%) 得た。

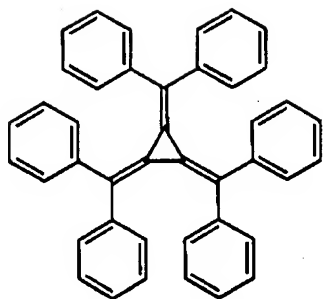
【0532】

以下に、一般式 (C3-1) 乃至一般式 (C3-4) で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

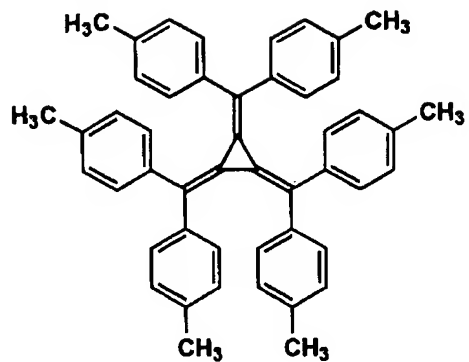
【0533】

【化367】

C3-1

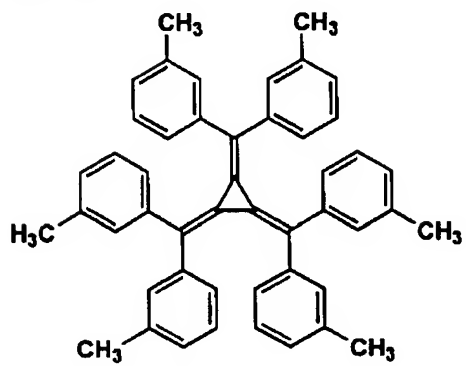


C3-2

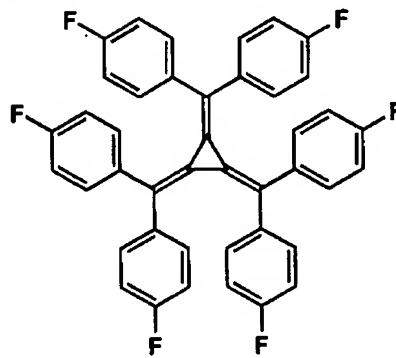


10

C3-3

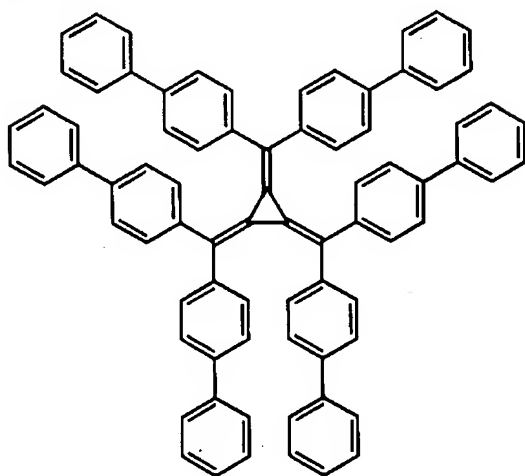


C3-4



20

C3-5



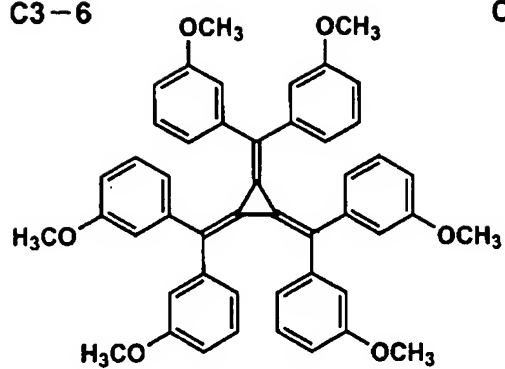
30

40

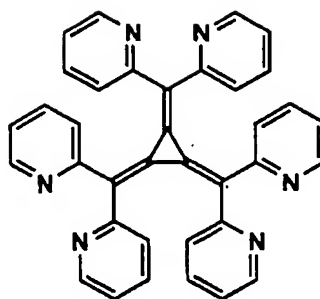
【 0 5 3 4 】  
【 化 3 6 8 】



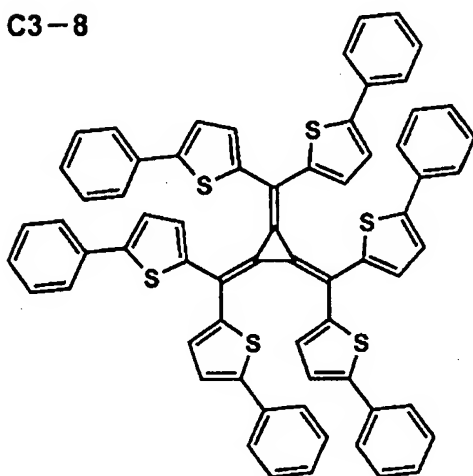
C3-6



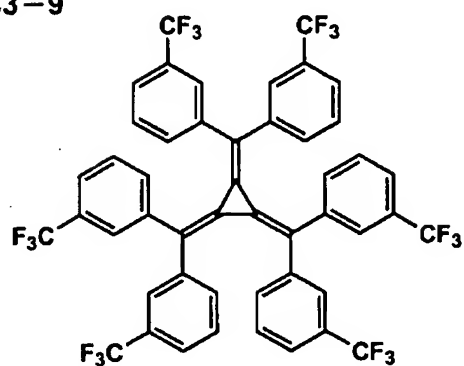
C3-7



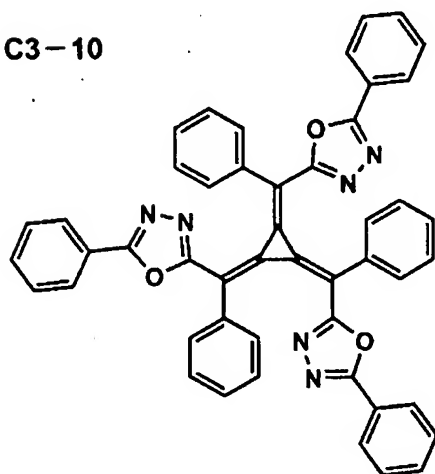
C3-8



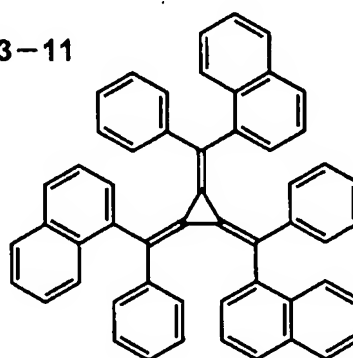
C3-9



C3-10



C3-11



【 0 5 3 5 】  
【 化 3 6 9 】

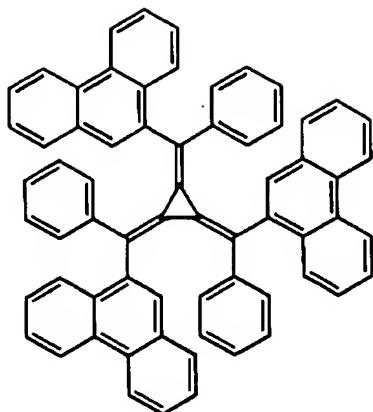
10

20

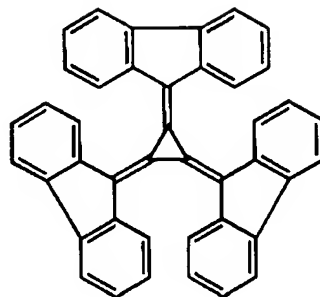
30

40

C3-12

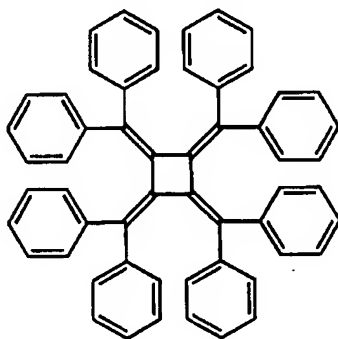


C3-13

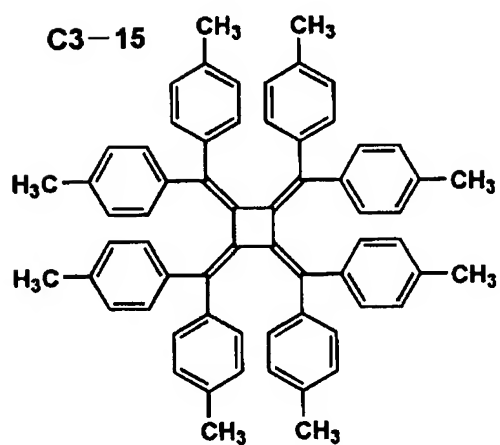


10

C3-14

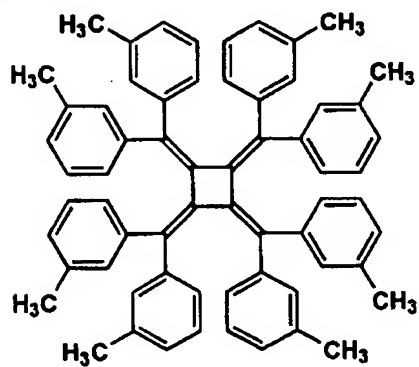


C3-15



20

C3-16

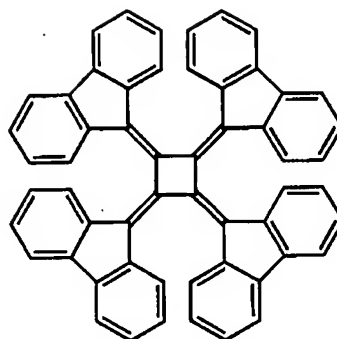
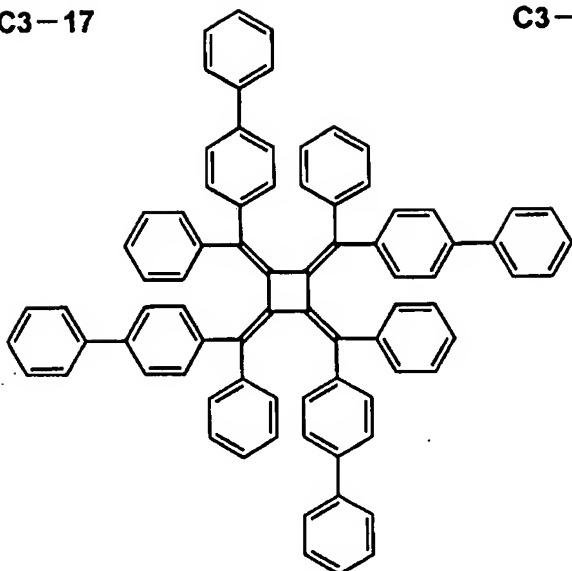


30

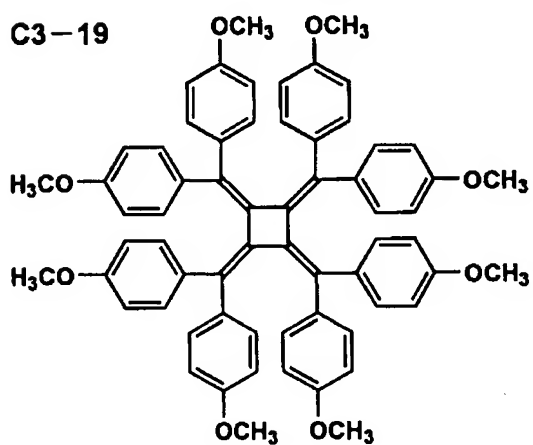
40

【 0 5 3 6 】

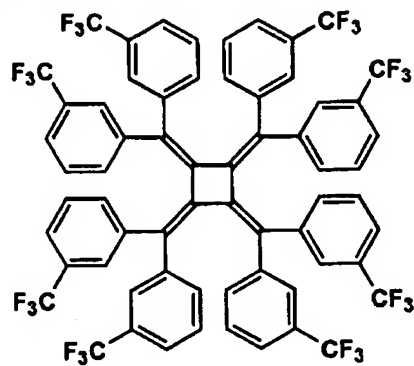
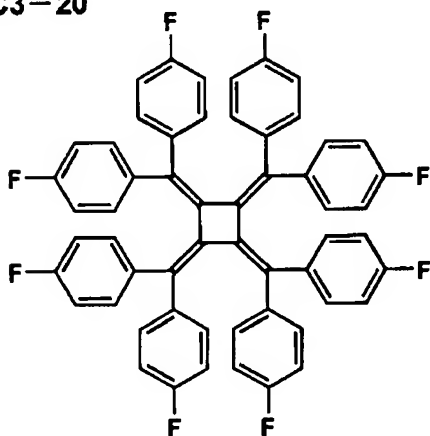
【 化 3 7 0 】



10



20

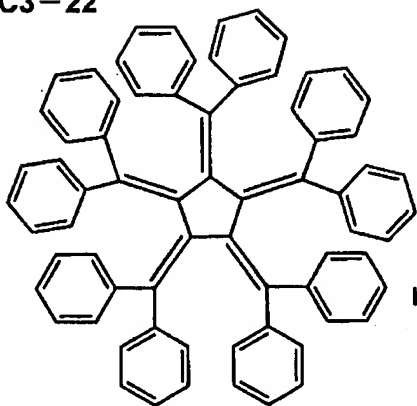


30

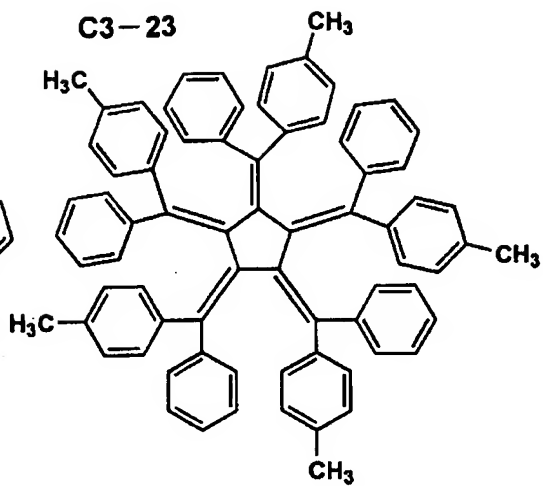
40

【 0 5 3 7 】  
【 化 3 7 1 】

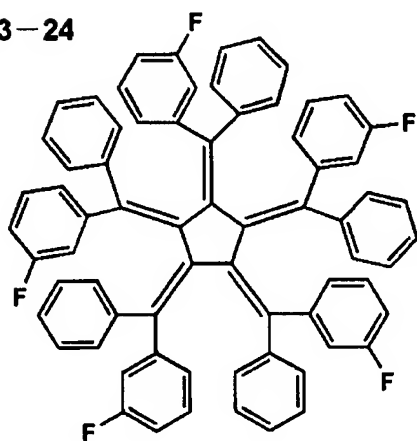
C3-22



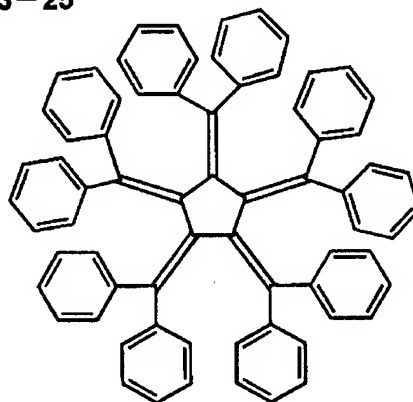
C3-23



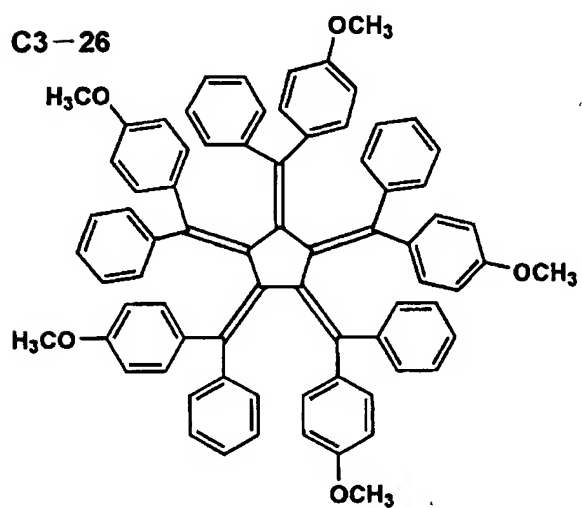
C3-24



C3-25



C3-26



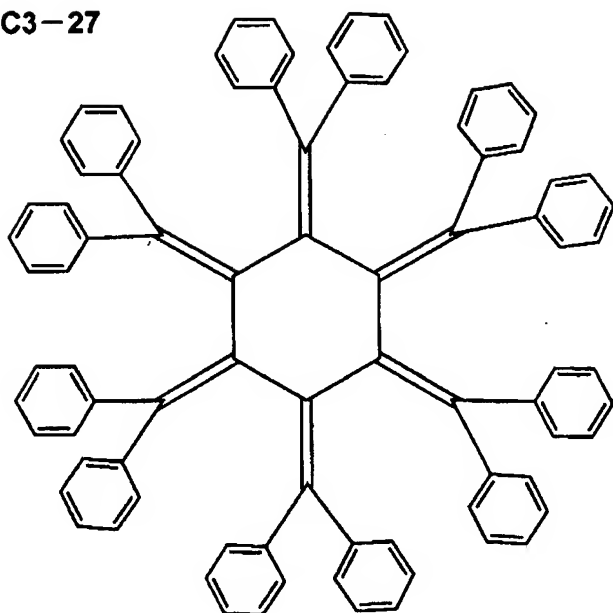
【 0 5 3 8 】  
【 化 3 7 2 】

10

20

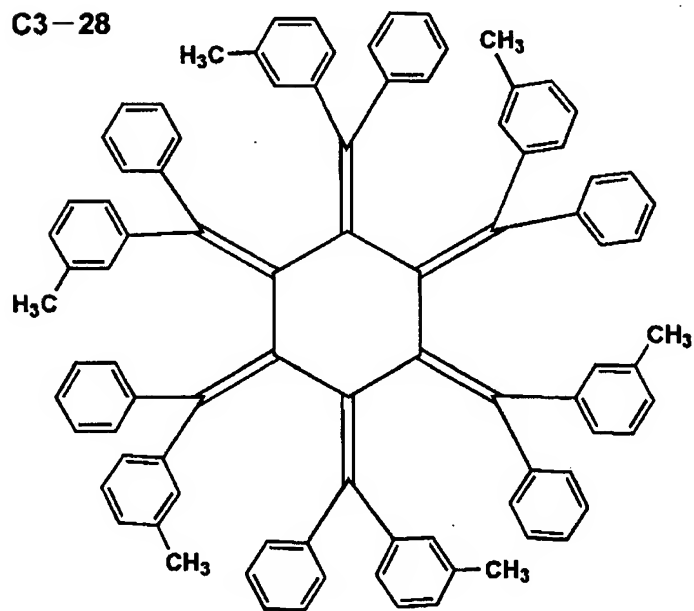
30

40

**C3-27**

10

20

**C3-28**

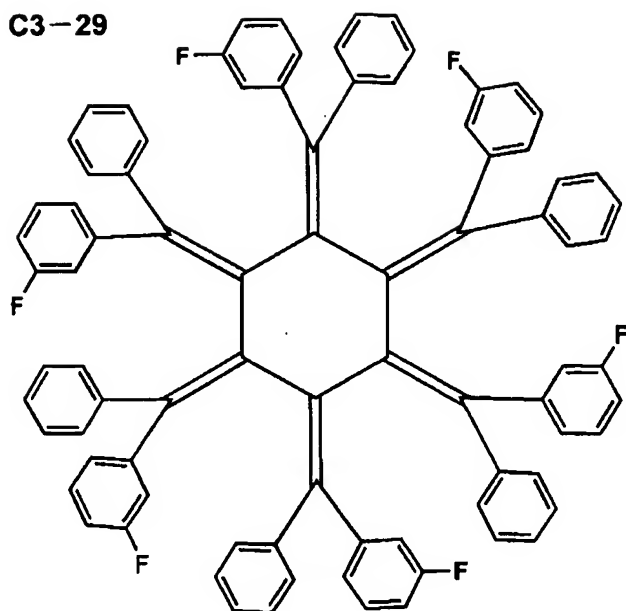
30

40

【 0 5 3 9 】

【 化 3 7 3 】

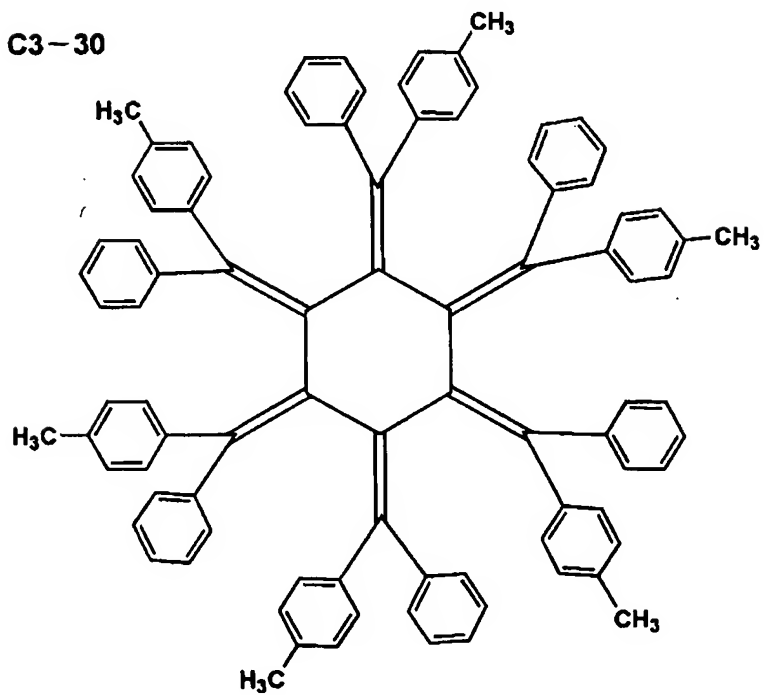
C3-29



10

20

C3-30



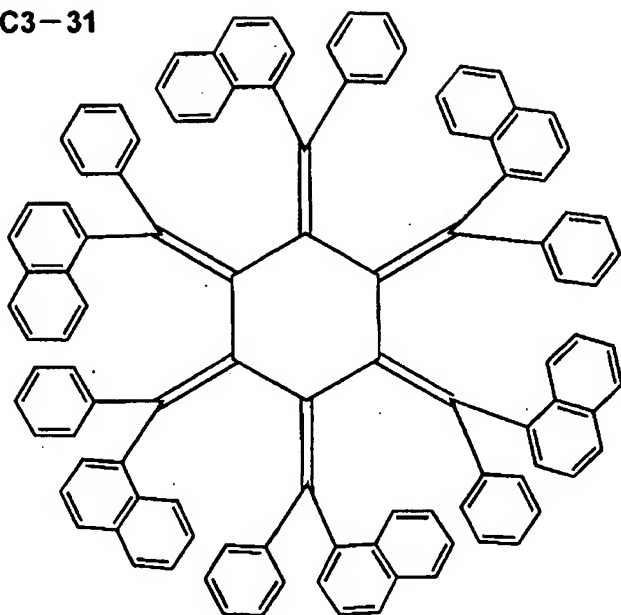
30

40

【 0 5 4 0 】

【 化 3 7 4 】

C3-31



10

20

## 【0541】

以下に、本発明の一般式（C4-1）で表される化合物について詳しく説明する。

## 【0542】

一般式（C4-1）において、 $Ar_1$  及び  $Ar_2$  はそれぞれ置換基を有していても良い2価の芳香族炭化水素群又は芳香族複素環群を表し、異なっても同一でも良い。芳香族炭化水素群としては、1,4-フェニレン、1,4-ナフチレン、1,6-ナフチレン、4,4'-ビフェニレン等が挙げられ、芳香族複素環群としては、5,5'-(2,2')-ビチオフェニル、5,5'-(2,2')-ビ(1,3,4)-オキサジアゾリル、4,7-ベンゾチアゾリル、4,7-1H-インドリル、4,7-1H-ベンゾトリアゾリル等挙げられる。置換基としては好ましくはアルキル基（メチル基、エチル基、トリフルオロメチル基等）、アルコキシ基（メトキシ基等）、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子等）、アリアル基（フェニル基等）が挙げられる。

30

## 【0543】

$R_1 \sim R_{12}$  はそれぞれ独立に水素原子、置換又は無置換のアルキル基（メチル基、エチル基、トリフルオロメチル基等）、シクロアルキル基（シクロヘキシル基等）、アルコキシ基（メトキシ基等）又はハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子等）を表す。

## 【0544】

次に本発明の一般式（C4-1）で表される化合物の代表的な合成例を述べる。

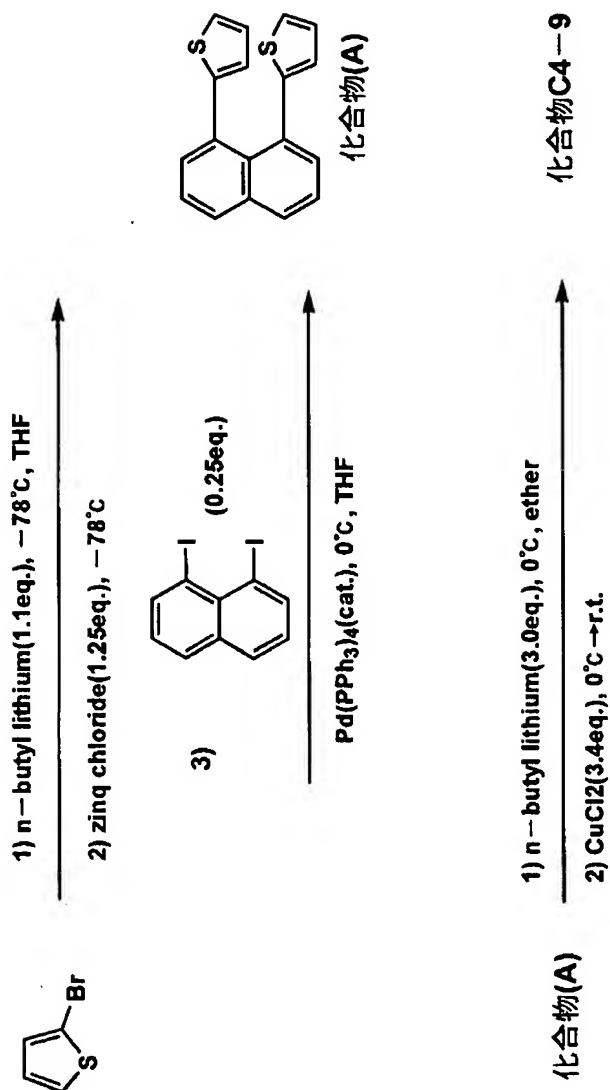
## 【0545】

〔合成例〕 化合物（C4-9）の合成

## 【0546】

## 【化375】

40



10

20

30

## 【0547】

2-ブロモチオフェン15.0gを窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン200mlに溶解し、-78°Cでn-ブチルリチウム-ヘキサン(1.5mol/L)溶液を67.5ml滴下し、30分攪拌後、塩化亜鉛15.7gを加えた。さらに30分攪拌後、1,8-ジヨードナフタレン8.74gとテトラキストリフェニルホスフィンパラジウム200mgを加えた後昇温し、室温で20時間攪拌した後、反応溶液を抽出、乾燥、濃縮し、カラムクロマトグラフィーで精製することで、化合物(A)を3.20g(収率48%)得た。次に化合物(A)3.0gを窒素雰囲気下脱水エーテル100mlに溶解し、0°Cでn-ブチルリチウム-ヘキサン(1.5mol/L)溶液を20.6ml滴下し、30分攪拌した後、塩化銅(II)4.71gを加え、室温まで昇温した。反応溶液を抽出、乾燥、濃縮したのち、再結晶することで化合物(C4-9)を1.05g(収率18%)得た。

40

## 【0548】

[合成例] 化合物(C4-3)の合成

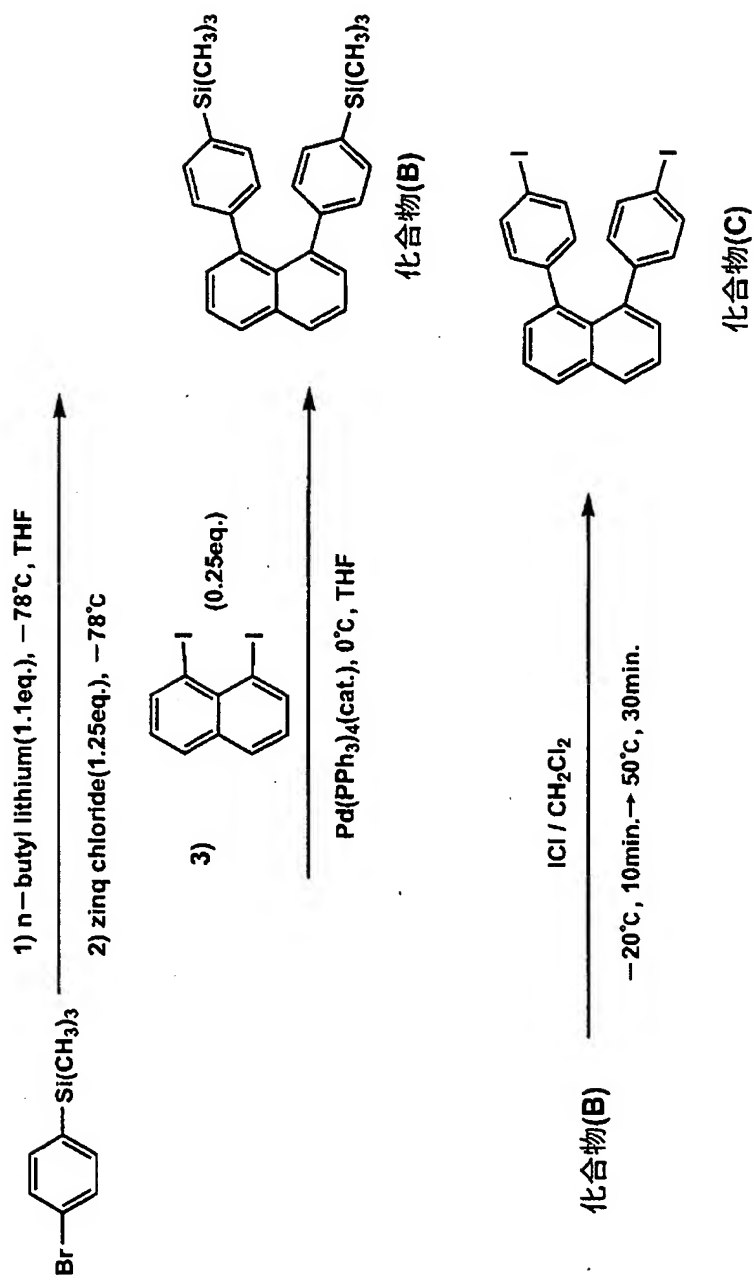
## 【0549】

## 【化376】

50



【 0 5 5 0 】  
 【 化 3 7 7 】

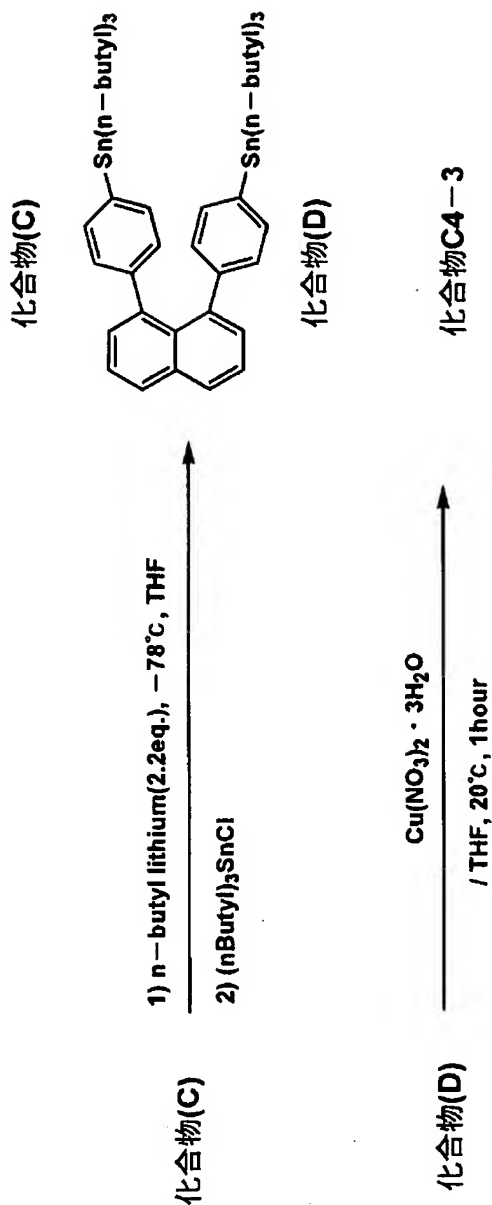


10

20

30

40



10

20

30

## 【0551】

1-ブロモ-4-トリメチルシリルベンゼン 22.9 g を窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン 300 ml に溶解し、 $-78^\circ\text{C}$  で  $n$ -ブチルリチウム-ヘキサン (1.5 mol/L) 溶液を 80 ml 滴下し、30 分攪拌後、塩化亜鉛 17.7 g を加えた。30 分攪拌後、1,8-ジヨードナフタレン 9.50 g とテトラキストリフェニルホスフィンパラジウム 3.00 g を加えた後昇温し、室温で 15 時間攪拌した後、反応溶液を抽出、乾燥、濃縮し、カラムクロマトグラフィーで精製することで、化合物 (B) を 6.37 g (収率 60%) 得た。化合物 (B) 6.37 g を四塩化炭素 100 ml に溶解し、 $-20^\circ\text{C}$  で一塩化ヨウ素 1.5 ml を加え、その後  $50^\circ\text{C}$  に昇温し、30 分攪拌し、反応溶液を抽出、乾燥、濃縮することで、化合物 (C) を 4.90 g (収率 74%) 得た。次に化合物 (C) 4.9 g を窒素雰囲気下脱水テトラヒドロフラン 100 ml に溶解し、 $-78^\circ\text{C}$  で  $n$ -ブチルリチウム-ヘキサン (1.5 mol/L) 溶液を 13.5 ml 滴下し、30 分攪拌後、トリ ( $n$ -ブチル) 塩化すず 12.5 ml を加え、室温まで昇温した。反応液を抽出、

40

50

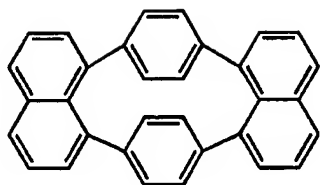
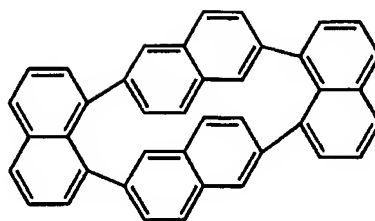
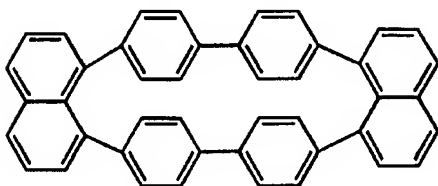
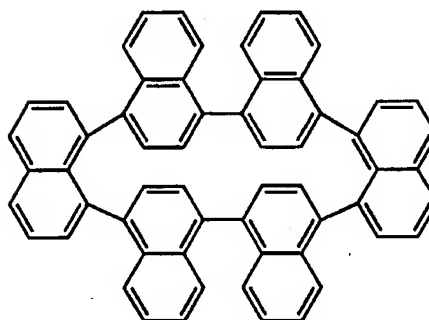
乾燥、濃縮し、カラムクロマトグラフィーで精製することで、化合物 (D) を 6.00 g (収率 76%) 得た。化合物 (D) 6.00 g を 100 ml のテトラヒドロフランに溶解し、硝酸銅三水和物 3.72 g を加え、室温まで昇温した。一時間攪拌後、反応溶液を抽出、乾燥、濃縮した後、再結晶することで化合物 (C4-3) を 1.60 g (収率 41%) 得た。

【0552】

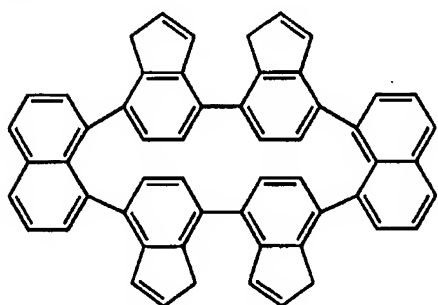
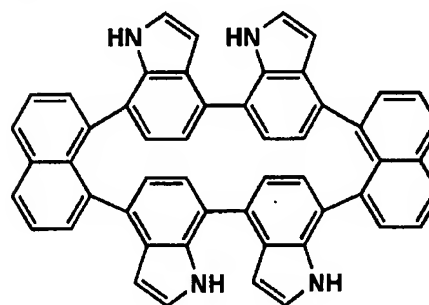
以下に、本発明における一般式 (C4-1) で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0553】

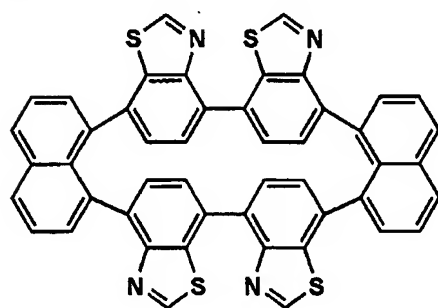
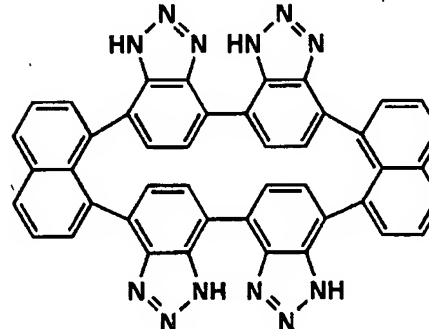
【化378】

**C4-1****C4-2****C4-3****C4-4**

10

**C4-5****C4-6**

20

**C4-7****C4-8**

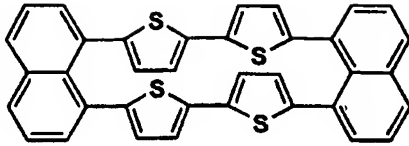
30

40

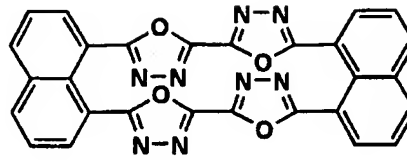
【 0 5 5 4 】

【 化 3 7 9 】

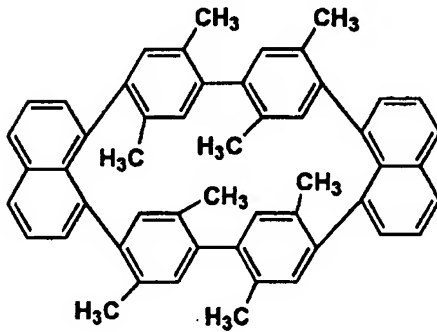
C4-9



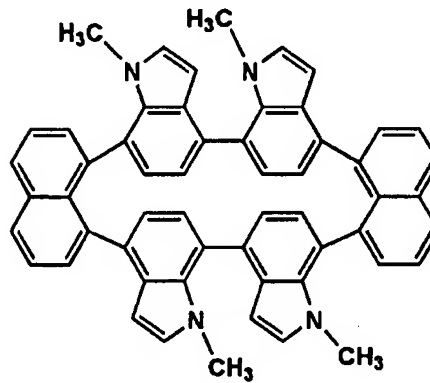
C4-10



C4-11

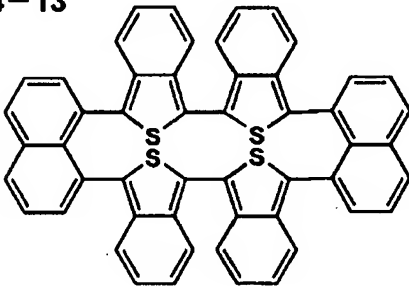


C4-12



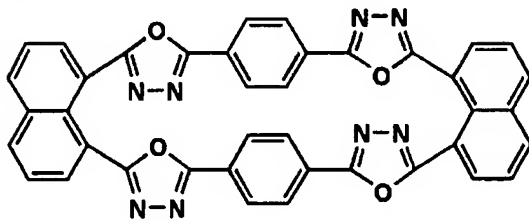
10

C4-13



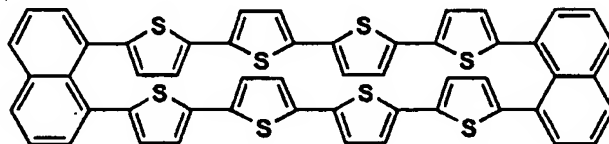
20

C4-14



30

C4-15



40

【0555】

以下に、本発明の一般式（C5-1）及び一般式（C5-2）で表される化合物について詳しく説明する。

【0556】

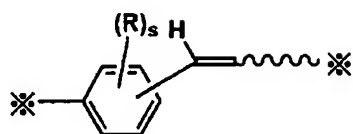
一般式（C5-1）において、 $S_1$  及び  $S_2$  はそれぞれスチリル基を表す。スチリル基は一般式（C5-3）で表される。

【0557】

50

【化 3 8 0】

## 一般式(C5-3)



10

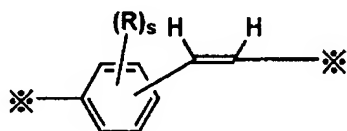
【0 5 5 8】

式中、Rは置換基を表し、sは0～4の整数を表し、※は結合部分を表す。複数のS<sub>1</sub>及びS<sub>2</sub>は各々同一でも異なってもよい。また、2重結合部分はシス型でもトランス型でもよい。一般式(C5-3)の波線は、一般式(C5-3)が一般式(C5-4)、一般式(C5-5)の両方の場合を表すことを意味する。

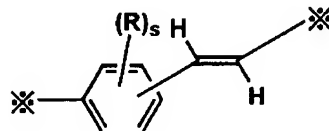
【0 5 5 9】

【化 3 8 1】

## 一般式(C5-4)シス型



## 一般式(C5-5)トランス型



20

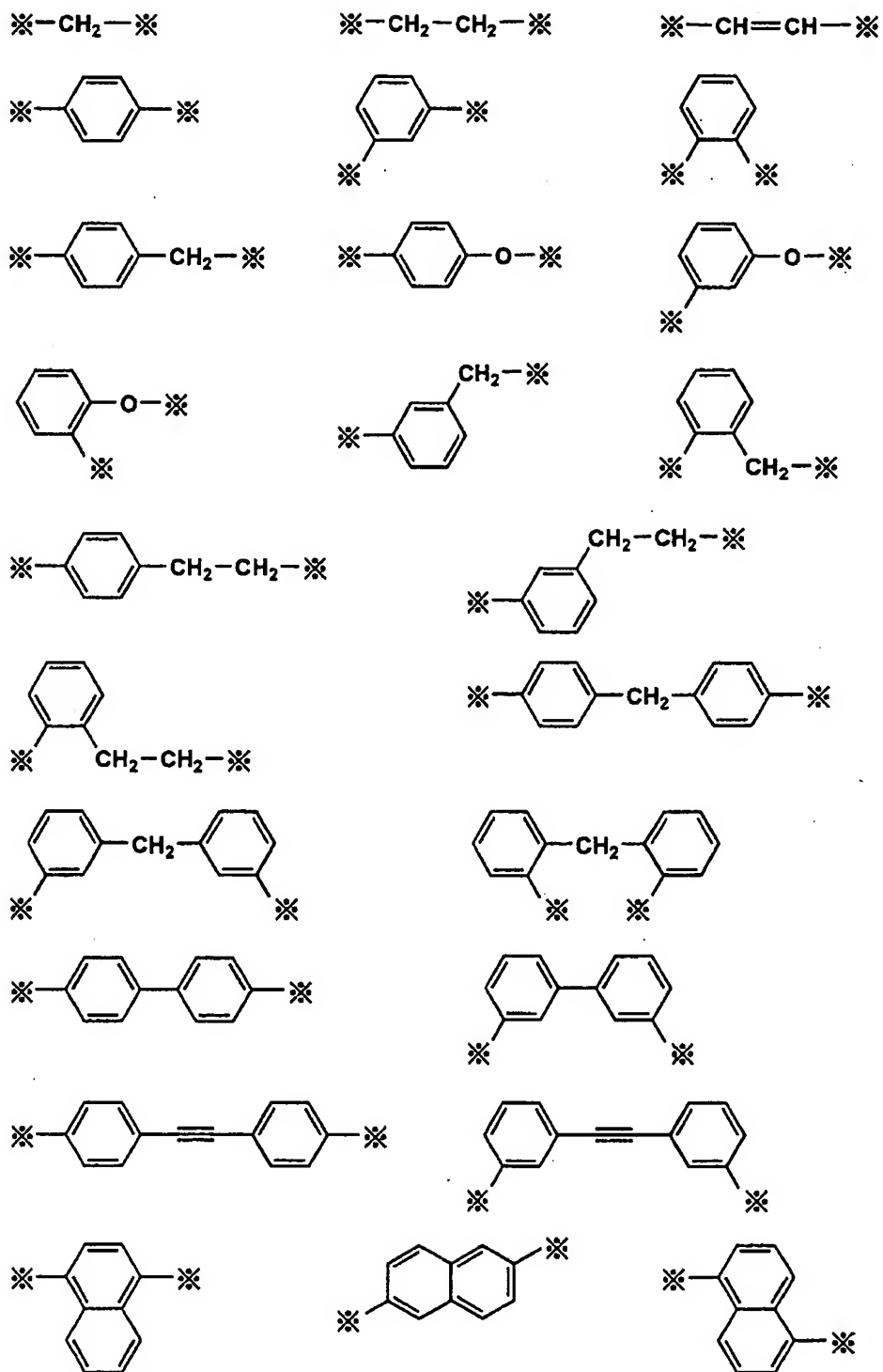
【0 5 6 0】

また、一般式(C5-1)において、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>は2価の連結基を表し、好ましくは以下のような連結基を表し、各々置換基を有していてもよい。(※は結合部位を表す。)

【0 5 6 1】

【化 3 8 2】

30



## 【0562】

上述の連結基の置換基としては、特に限定はないが、アルキル基（メチル基、エチル基、トリフルオロメチル基等）、アルコキシ基（メトキシ基等）、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子等）、アリール基（フェニル基等）が挙げられる。

## 【0563】

一般式（C5-2）において、 $\text{Ar}_1 \sim \text{Ar}_3$  は2価のアリーレン基を表し、各々異なっても同一でもよい。2価のアリーレン基としては、1, 2-フェニレン、1, 3-フ

10

20

30

40

50

ェニレン、1, 4-フェニレン、1, 4-ナフチレン、2, 6-ナフチレン、4, 4'-ビフェニレン、3, 3'-ビフェニレン、3, 6-フェナンスレンが挙げられる。q は 0 ~ 6 の整数を表す。また一般式 (C 5 - 2) の波線は、上述した一般式 (C 5 - 3) における波線と同義である。

【0564】

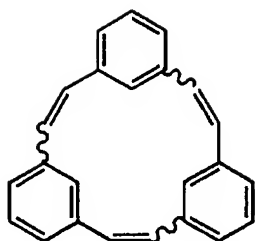
以下に、本発明における一般式 (C 5 - 1) 及び一般式 (C 5 - 2) で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0565】

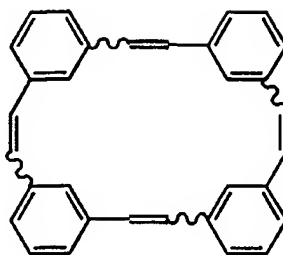
【化383】



C5-1

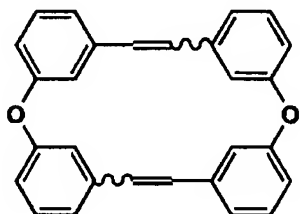


C5-2

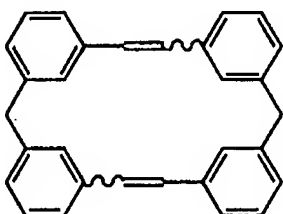


10

C5-3

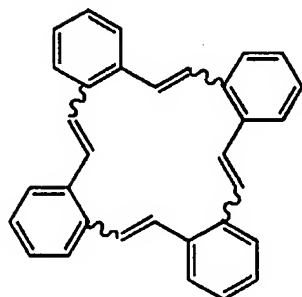


C5-4

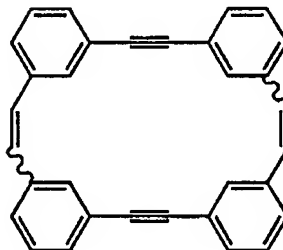


20

C5-5

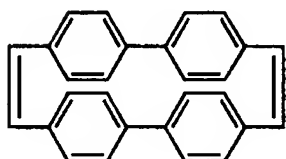


C5-6

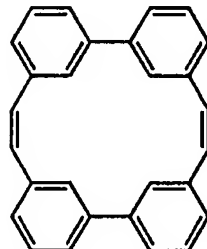


30

C5-7



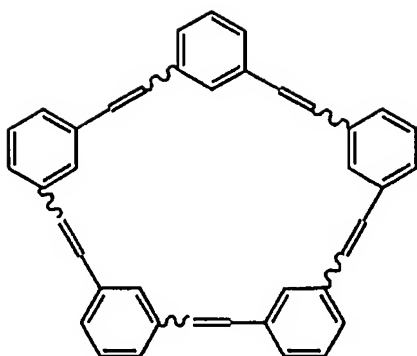
C5-8



40

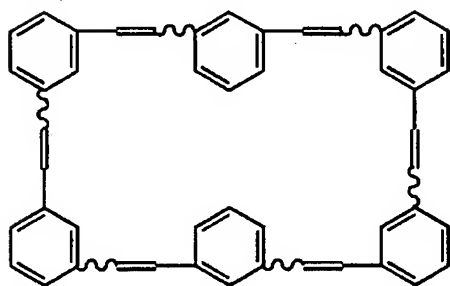
【 0 5 6 6 】  
【 化 3 8 4 】

C5-9



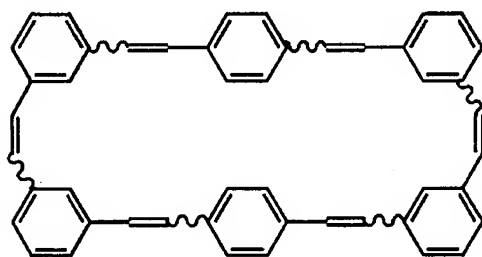
10

C5-10



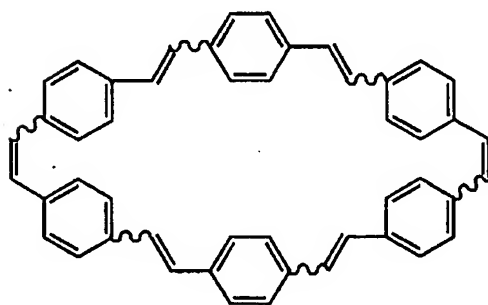
20

C5-11



30

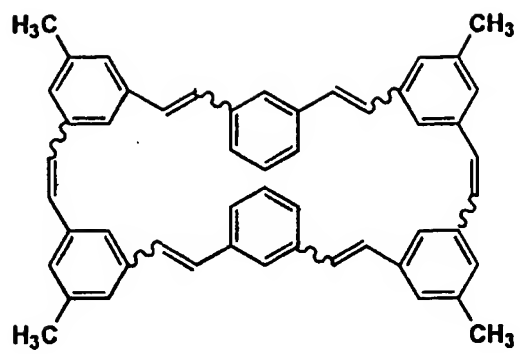
C5-12



40

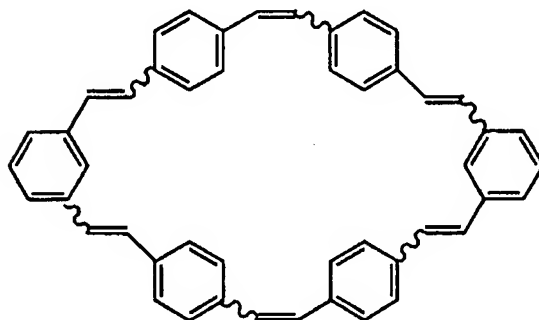
【 0 5 6 7 】  
【 化 3 8 5 】

C5-13



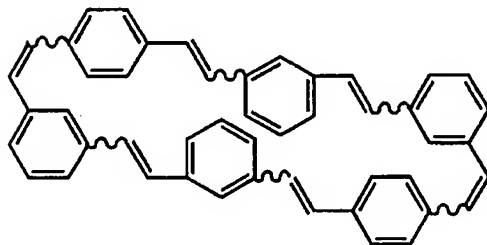
10

C5-14



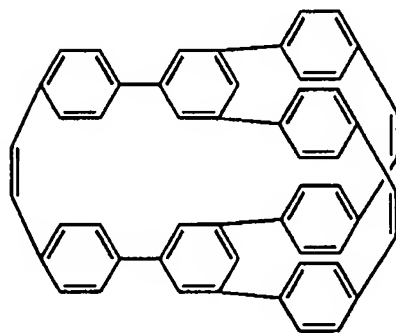
20

C5-15



30

C5-16

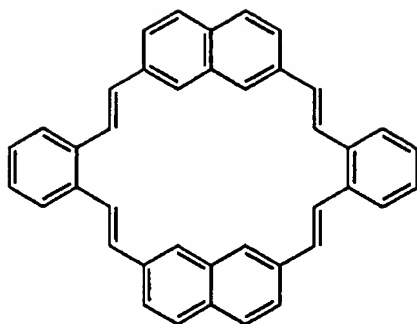


40

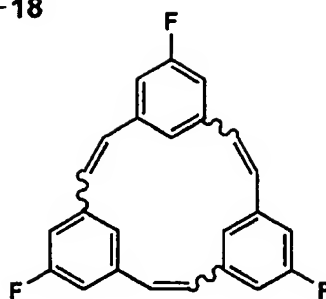
【 0 5 6 8 】

【 化 3 8 6 】

C5-17

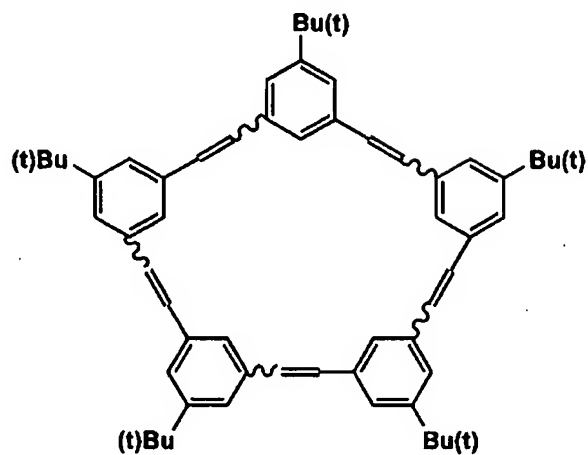


C5-18



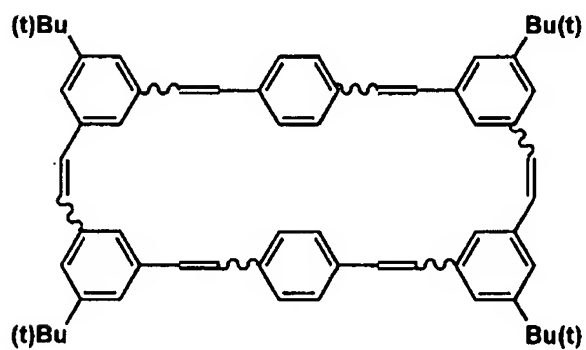
10

C5-19



20

C5-20



30

40

## 【0569】

次に本発明の一般式（C5-1）及び一般式（C5-2）で表される化合物の代表的な合成例を述べる。

## 【0570】

合成例（化合物（C5-1））

〈化合物（A）の合成〉

3-プロモベンジルホスホニウム塩 5.5 g を窒素雰囲気下、DMSO 50 ml に溶解し

50

、室温で攪拌下、カリウム-*t*-ブトキシド 1.33 g を加え、1 分間攪拌した後、1,3-ジホルミルベンゼン (イソフタルアルデヒド) 657 mg を加え、水にあげ、抽出、乾燥、濃縮した。これをカラムクロマトグラフィーで精製し、化合物 (A) を 770 mg (収率 36%) 得た。

【0571】

〈化合物 (B) の合成〉

化合物 (A) 1.17 g を窒素雰囲気下、THF 30 ml に溶解し、-78℃で *n*-ブチルリチウム-ヘキサン溶液 3.9 ml を滴下し、30 分攪拌後、DMF 4.4 ml を加え、室温まで昇温した。反応溶液を水にあげ、抽出、乾燥、濃縮し、カラムクロマトグラフィーで精製し、化合物 (B) を 888 mg (収率：ほぼ定量的) 得た。

10

【0572】

〈化合物 (C5-1) の合成〉

亜鉛 1.3 g とヨウ化第一銅 0.13 g を減圧下加熱乾燥し、窒素置換した後、脱水ジメトキシエタン 30 ml を加え、続いて四塩化チタン 1.1 ml を加えた。反応が穏やかになってから、3 時間還流した後氷冷し、0℃で化合物 (B) 338 mg をジメトキシエタン 10 ml に溶かした溶液を滴下した。滴下終了後、終夜室温で攪拌し、続いて 6 時間還流した。反応溶液をアルミナカラムに通し、抽出、乾燥、濃縮した後、カラムクロマトグラフィーで精製し、化合物 (C5-1) を無色粉末として 226 mg (収率 74%) 得た。

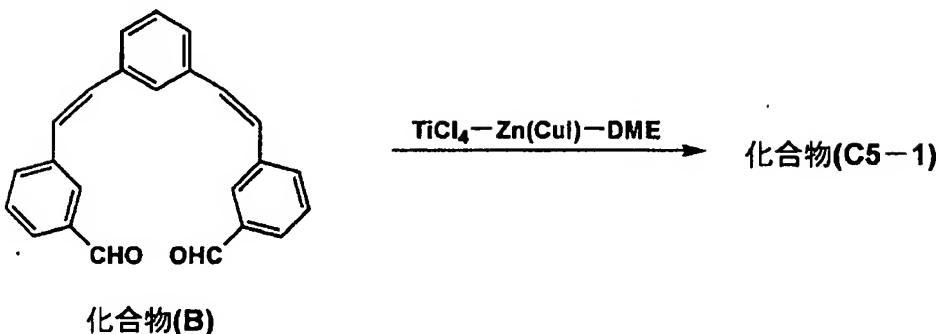
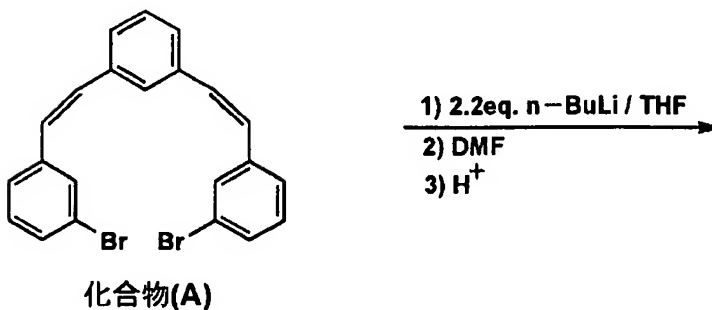
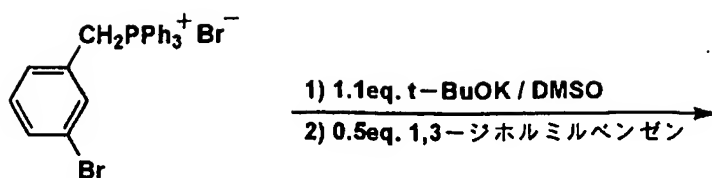
【0573】

20

化合物 (C5-1) の合成プロセスを次に示す。

【0574】

【化387】



## 【0575】

合成例（化合物（C5-12））

＜化合物（C）の合成＞

4-ブロモベンジルホスホニウム塩 4.2 g を窒素雰囲気下、DMSO 40 ml に溶解し、室温で攪拌下、カリウム-*t*-ブトキシド 1.01 g を加え、1 分攪拌した後、1,4-ジホルミルベンゼン（パラフタルアルデヒド）502 mg を加え、水にあげ、抽出、乾燥、濃縮した。これをカラムクロマトグラフィーで精製し、化合物（C）を 490 mg（収率 30%）得た。

## 【0576】

＜化合物（D）の合成＞

化合物（C）2.02 g を窒素雰囲気下、THF 60 ml に溶解し、-78℃で *n*-ブチルリチウム-ヘキサン溶液 6.80 ml を滴下し、30 分攪拌後、DMF 7.6 ml を加え、室温まで昇温した。反応溶液を水にあげ、抽出、乾燥、濃縮し、カラムクロマトグラフィーで精製し、化合物（D）を 1.45 g（収率 93%）得た。

## 【0577】

＜化合物（C5-12）の合成＞

亜鉛 3.9 g とヨウ化第一銅 0.39 g を減圧下加熱乾燥し、窒素置換した後、脱水ジメトキシエタン 45 ml と脱水トルエン 45 ml の混合溶媒を加え、続いて四塩化チタン 3.3 ml を加えた。反応が穏やかになってから、3 時間還流した後水冷し、0℃で化合物（D）1.01 g をジメトキシエタン 30 ml に溶かした溶液を滴下した。滴下終了後終

10

20

30

40

50

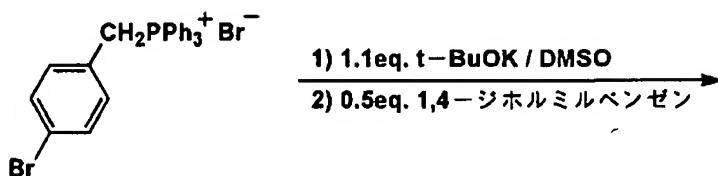
夜室温で攪拌し、続いて6時間還流した。反応溶液をアルミナカラムに通し、抽出、乾燥、濃縮した後、カラムクロマトグラフィーで精製し、化合物(C5-12)を黄色粉末として484mg(収率53%)得た。

【0578】

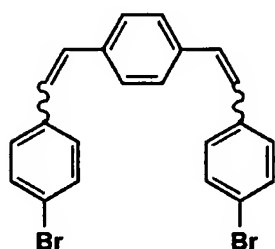
化合物(C5-12)の合成プロセスを次に示す。

【0579】

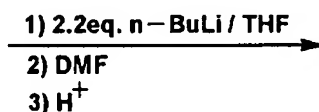
【化388】



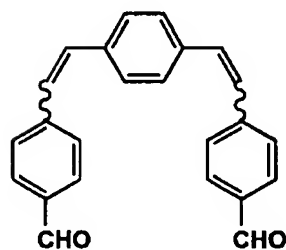
10



化合物(C)



20



化合物(D)



化合物(C5-12)

30

【0580】

合成例(化合物(C5-20))

〈化合物(E)の合成〉

3-ブロモ-5-tert-ブチルベンジルホスホニウム塩2.4gを窒素雰囲気下、DMSO 30mlに溶解し、室温で攪拌下、カリウムtert-ブトキシド500mgを加え、1分攪拌した後、1,4-ジホルミルベンゼン(パラフタルアルデヒド)270mgを加え、水にあげ、抽出、乾燥、濃縮した。これをカラムクロマトグラフィーで精製し化合物(E)を1.06g(収率96%)得た。

【0581】

〈化合物(F)の合成〉

化合物(E)1.06gを窒素雰囲気下、THF 30mlに溶解し、-78℃でn-ブチルリチウムヘキサン溶液2.83mlを滴下し、30分攪拌後、DMF 3.2mlを加え、室温まで昇温した。反応溶液を水にあげ、抽出、乾燥、濃縮し、カラムクロマトグラ

40

50

フィーで精製し化合物 (F) を 823 mg (収率 95%) 得た。

【0582】

〈化合物 (C5-20) の合成〉

亜鉛 1.3 g とヨウ化第一銅 0.13 g を減圧下加熱乾燥し、窒素置換した後、脱水ジメトキシエタン 15 ml と脱水トルエン 15 ml の混合溶媒を加え、続いて四塩化チタン 1.1 ml を加えた。反応が穏やかになってから、3 時間還流した後氷冷し、0℃で化合物 (F) 414 mg をジメトキシエタン 10 ml に溶かした溶液を滴下した。滴下終了後終夜室温で攪拌し、続いて 6 時間還流した。反応溶液をアルミナカラムに通し、抽出、乾燥、濃縮した後、カラムクロマトグラフィーで精製し化合物 (C5-20) を無色粉末として 197 mg (収率 51%) 得た。

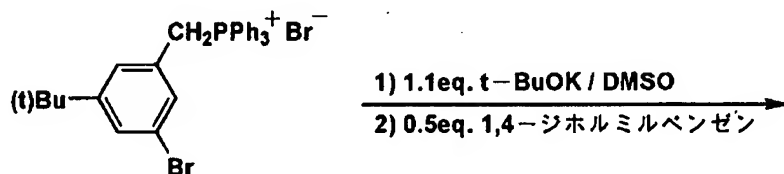
10

【0583】

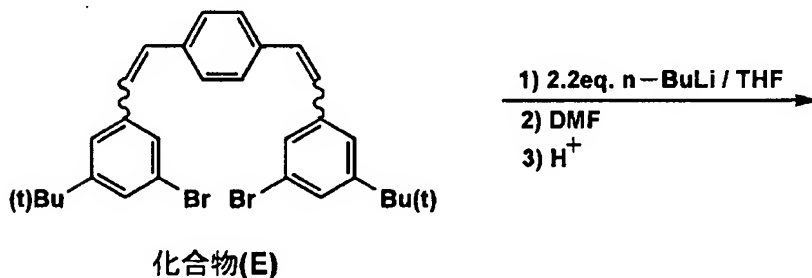
化合物 (C5-20) の合成プロセスを次に示す。

【0584】

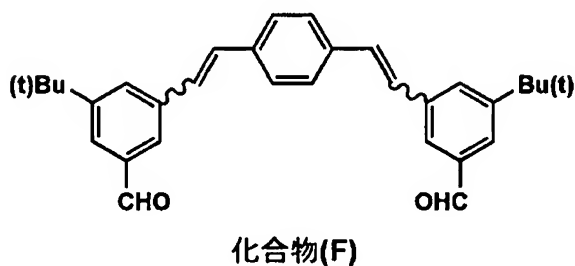
【化389】



20



30



40



化合物(C5-20)

【0585】

次いで、本発明において用いられる更に別の蛍光性化合物について説明する。

【0586】

50



本発明者等は、有機エレクトロルミネッセンスに用いることのできる蛍光性化合物、特にホスト化合物として用いられる蛍光性化合物について鋭意検討を重ねた結果、素子の発光輝度と蛍光性化合物化合物の分子中の窒素原子数と炭素原子数の比 ( $N/C$ ) に、ある対応関係があることを見出しており、その結果、 $N/C$  がある程度小さい値をとる場合に、発光輝度のさらなる向上が認められた。これは、 $N/C$  がある程度大きくなると、ホスト化合物の分子中の窒素原子の何らかの作用により発光輝度に限界が見られるものと推定される。したがって、例えば、燐光性化合物をドーパントに用いた有機 EL 素子の発光輝度を向上させるには、ホスト化合物の  $N/C$  を小さくすることが有効であることが分かった。

## 【0587】

本発明において、蛍光性化合物は光励起により2個の電子スピンの反平行の状態である励起一重項からの発光が観測される化合物のことであり、燐光性化合物は光励起により2個の電子スピンの平行の状態である励起三重項からの発光が観測される化合物である。ここで、本発明に記載の燐光性化合物では、前記蛍光性化合物の励起一重項状態、または、励起三重項状態からのエネルギー移動により、室温 ( $15 \sim 30^\circ\text{C}$ ) において励起三重項状態が形成されたと考えられている。通常、燐光発光は  $77^\circ\text{K}$  の低温でしか観測不能と考えられていたが、近年室温で燐光発光を観測できる化合物が見出されてからは、多くの化合物がイリジウム錯体系など重金属錯体系化合物を中心に合成検討されている (例えば、S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304ページ、2001年)。

## 【0588】

本発明において、蛍光性化合物の蛍光極大波長は、蛍光性化合物をガラス基板上に  $100\text{nm}$  蒸着したときの蒸着膜の蛍光スペクトルを測定した時の極大値である。

## 【0589】

本発明において、蛍光性化合物と燐光性化合物の両方を含有する発光層をもつ有機エレクトロルミネッセンス素子において、分子中の窒素原子数と炭素原子数の比 ( $N/C$ ) が0以上0.05以下のホスト化合物を燐光性化合物と併用する場合に、特異的に発光輝度の向上が認められたため、本発明において、燐光性化合物のホストとして組み合わせる蛍光性化合物は、該分子中の窒素原子数と炭素原子数の比 ( $N/C$ ) が0以上0.05以下のものであることが好ましい。この理由については余り明確ではないが、前述のように窒素原子数と炭素原子数の比 ( $N/C$ ) がある程度大きくなると、ホスト化合物の分子中の窒素原子の何らかの作用により発光輝度に限界が見られるためと推定される。

## 【0590】

また、本発明において、燐光性化合物のホストとして組み合わせる蛍光性化合物が、該分子中の窒素原子数と炭素原子数の比 ( $N/C$ ) が0より大きく0.03以下のものであると、特異的に発光寿命が長くなり好ましい。この理由については余り明確ではないが、ある程度以上の発光寿命を有するためには窒素原子を有するホスト化合物をもちいることが好ましいが、窒素原子数と炭素原子数の比 ( $N/C$ ) がある程度大きくなると窒素原子の何らかの作用により寿命に限界がみられるためと推定される。

## 【0591】

本発明において、ドーパントとして組み込む燐光性化合物の燐光発光極大波長は、ホストの蛍光性化合物の蛍光極大波長に比べ、より長波であることが必要である。これによりドーパントとして組み込んだ燐光性化合物の励起三重項による発光を利用した有機エレクトロルミネッセンス (EL) 素子を得ることができる。従って、素子を構成した状態において電界発光により得られる発光極大波長は、該ホストとして用いた蛍光性化合物の単独での蛍光極大波長 (蛍光性化合物をガラス上に  $100\text{nm}$  蒸着したときの蒸着膜で蛍光スペクトルを測定した時の極大値) よりも長波である。

## 【0592】

本発明において、ホスト化合物として用いる蛍光性化合物の蛍光極大波長は  $350\text{nm}$  から  $440\text{nm}$  であることが好ましく、更に好ましいのは  $390\text{nm} \sim 410\text{nm}$  である。

## 【0593】

又、低分子系の有機材料は、分子量が小さいと熱安定性が劣るため、発光輝度が十分ではない場合がある。本発明に用いる燐光性化合物のホストとなる蛍光性化合物は、熱安定性の観点から分子量が600以上であることが好ましく用いられる。

## 【0594】

本発明の燐光性化合物は溶液中の燐光量子収率が、25℃において0.001以上である。好ましくは、0.01以上である。さらに好ましくは、0.1以上である。

## 【0595】

以下に、励起三重項状態の量子収率 $\phi_p$ の測定手段及びその理論について述べる。

## 【0596】

励起一重項状態から基底状態へは無輻射遷移と蛍光放出により、それぞれ速度定数、 $k_{sn}$ 、 $k_f$ で励起エネルギーを失う。この他に、励起三重項状態への遷移が速度定数、 $k_{isc}$ で起き失活する。ここで、励起一重項状態の寿命、 $\tau_s$ は次式で定義される。

## 【0597】

$$\tau_s = (k_{sn} + k_f + k_{isc})^{-1}$$

また、蛍光の量子収率、 $\phi_f$ は次式で定義される。

## 【0598】

$$\phi_f = k_f \cdot \tau_s$$

励起三重項状態から基底状態へは無輻射遷移と燐光放出によりそれぞれ、速度定数、 $k_{tn}$ 、 $k_p$ で失活する。また、励起三重項状態の寿命、 $\tau_t$ は次式で定義される。

## 【0599】

$$\tau_t = (k_{tn} + k_p)^{-1}$$

$\tau_t$ は $10^{-6} \sim 10^{-3}$ 秒であり、長いものは数秒に及ぶ場合もある。そして、燐光の量子収率、 $\phi_p$ は励起三重項状態の生成の量子収率、 $\phi_{st}$ を用いて次のように定義される。

## 【0600】

$$\phi_p = \phi_{st} \cdot k_p \cdot \tau_t$$

上記パラメータは、第4版実験化学講座7の分光I Iの398ページ(1992年版、丸善)に記載の方法により測定することが出来る。上記パラメータ中、燐光性化合物の溶液中での燐光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明においては溶媒としてテトラヒドロフランを用いて測定を行ったものである。

## 【0601】

本発明における置換基の立体パラメータ $E_s$ とは、Taftによって定義された置換基定数であり、例えば「薬物の構造活性相関 化学の領域 増刊122号南江堂社刊」に記載されている。特に本発明で言う $E_s$ 値とは、水素原子を基準としたものであり、すなわち $E_s(H=0)$ の値であり、メチル基を基準とした $E_s(CH_3=0)$ と定義した $E_s$ 値から1.24差し引いた値を示す。その代表的な値を表1に示す。

## 【0602】

## 【表1】

10

20

30

置換基	Es 値
H	0.00
CH <sub>3</sub>	-1.24
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	-1.31
i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	-1.71
t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	-2.78
F	-0.46
Cl	-0.97
Br	-1.16
CF <sub>3</sub>	-2.40
CCl <sub>3</sub>	-3.30
OCH <sub>3</sub>	-0.55
OH	-0.55
SH	-1.07
CN	-0.51

10

## 【0603】

20

本発明に用いる蛍光性化合物は、蛍光性化合物分子中の窒素原子数と炭素原子数の比（N/C）が0以上0.05以下である化合物をホスト化合物として燐光性化合物と併用することが好ましい。これにより、より発光輝度が高く、発光寿命にも優れた有機EL素子を提供することができるが、別の観点からみると、本発明においては燐光性化合物と組み合わせて用いるホスト化合物として、前記一般式（C6-I）～（C6-V）で表される化合物を用いることが有用である。

## 【0604】

以下に、本発明における一般式（C6-I）～（C6-V）で表される化合物について詳しく説明する。

## 【0605】

30

前記一般式（C6-I）において、nは0から3の整数を表し、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は各々、置換基を表し、置換基として好ましくは、アルキル基（メチル、エチル、i-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、t-ブチル等）、ハロゲン原子（弗素、塩素等）、アルコキシ基（メトキシ、エトキシ、i-プロポキシ、ブトキシ等）が挙げられる。Arは置換基を有していても良い芳香族炭化水素環又は芳香族複素環基を表し、好ましくはナフチル、ピナフチル、キノリル、イソキノリル、ベンゾオキサゾリル、ベンズイミダゾリル等を表す。nが2以上の整数を表すとき、複数のR<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>は同一であっても異なってもよい。

## 【0606】

一般式（C6-II）においてn<sub>4</sub>、n<sub>5</sub>及びn<sub>6</sub>は各々0から7の整数を表す。一つ又は複数のR<sub>6</sub>、R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は各々アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、ハロゲン、アルコキシ基、アリールオキシ基、複素環基の中から選ばれる置換基を表し、メチル基、ナフチル基が特に好ましい。

40

## 【0607】

n<sub>4</sub>～n<sub>6</sub>が2以上の整数を表すとき、複数のR<sub>6</sub>～R<sub>8</sub>は同一であっても異なってもよい。

## 【0608】

一般式（C6-III）において、R<sub>11</sub>～R<sub>16</sub>、X<sub>1</sub>～X<sub>9</sub>は水素原子又は置換基を表し、それぞれ異なっても同一でも良い。R<sub>11</sub>～R<sub>16</sub>で表される基としては、好ましくは、アルキル基（例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、トリフルオロメチ

50

ル基、*t*-ブチル基等)が挙げられる。ただし、 $R_{11} \sim R_{16}$ のそれぞれの立体パラメータ  $E_{SR11} \sim E_{SR16}$  値の合計値は、 $E_{SR11} + E_{SR12} + E_{SR13} + E_{SR14} + E_{SR15} + E_{SR16} \leq -2.0$  を満たす。尚、互いに隣接する置換基同士は縮合して環構造を形成していてもよい。 $X_1 \sim X_9$  で表される置換基としてはアルキル基、アリール基、複素環基、ハロゲン原子、アルコキシ基、アミノ基等が好ましく、特に  $X_2$ 、 $X_5$ 、 $X_8$  はアリール基又はアミノ基(特にジアリールアミノ基)であることがさらに好ましい。

#### 【0609】

一般式(C6-IV)において、 $R_{101} \sim R_{128}$  はそれぞれ水素原子、または、置換基を表し、 $R_{101} \sim R_{104}$  の少なくとも一つは置換基を表す。 $R_{101} \sim R_{128}$  が置換基を表す場合、その置換基として好ましくは、アルキル基(例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロ-*n*-ブチル基、パーフルオロ-*t*-ブチル基等)、シクロアルキル基(例えばシクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アラルキル基(例えばベンジル基、2-フェネチル基等)、アリール基(例えばフェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基等)、アルコキシ基(例えばメトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(例えばフェノキシ基等)、アリールアミノ基(例えば、ジフェニルアミノ基等)等が挙げられる。これらの基はさらに置換されていてもよく、前記置換基としては、ハロゲン原子、水素原子、トリフルオロメチル基、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、ジアルキルアミノ基、ジベンジルアミノ基、ジアリールアミノ基等が挙げられる。

#### 【0610】

一般式(C6-IV)において、 $R_{101} \sim R_{104}$  の置換基としては、アルキル基が好ましく、中でも、 $R_{101} \sim R_{104}$  のいずれか2つ、または、4つがメチル基であることがもっとも好ましい。

#### 【0611】

一般式(C6-V)において、 $R_{201} \sim R_{206}$  はそれぞれ水素原子、または、置換基を表す。 $R_{201} \sim R_{206}$  が置換基を表す場合、その置換基としては前記  $R_{101} \sim R_{128}$  の例で挙げられている置換基が好ましい。さらに好ましくは、アリール基、または、置換アリール基であり、最も好ましくはフェニル基または、置換フェニル基である。

#### 【0612】

一般式(C6-I)～(C6-V)で表される化合物の中でも、分子中の窒素原子数と炭素原子数の比( $N/C$ )が0.05以下であることが好ましく、分子中の窒素原子数と炭素原子数の比( $N/C$ )が0.03以下であることが最も好ましい。

#### 【0613】

以下に、本発明における一般式(C6-I)～(C6-V)で表される化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。

#### 【0614】

#### 【化390】

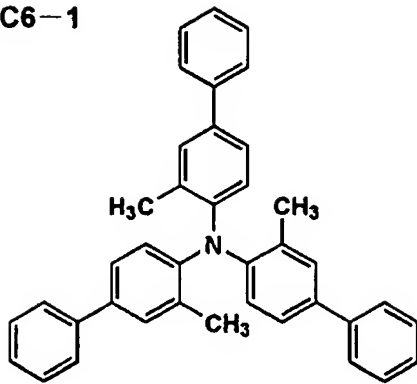
10

20

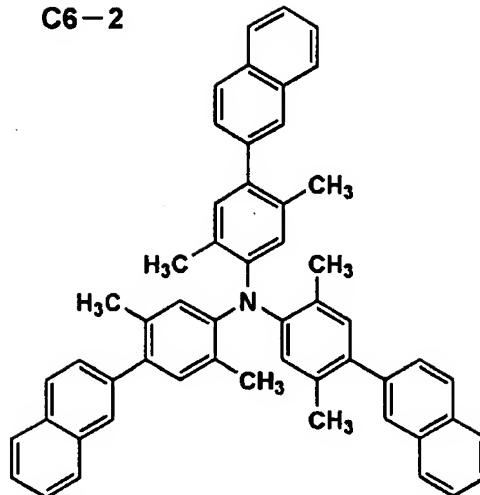
30

40

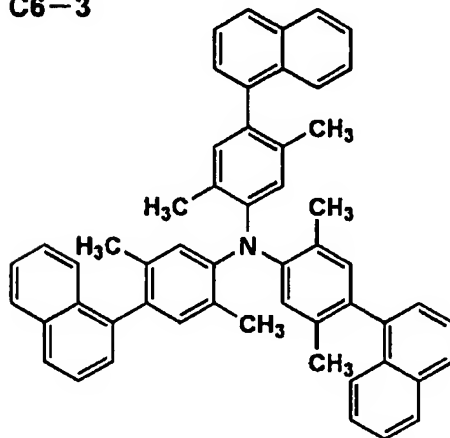
C6-1



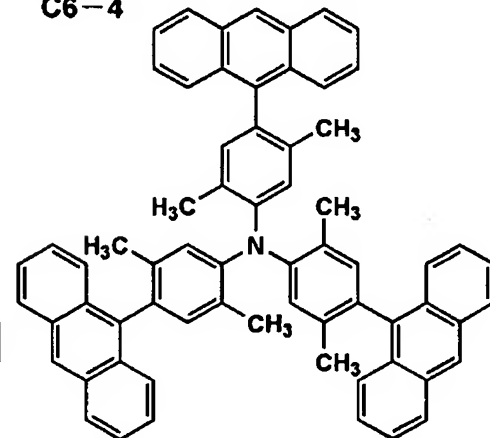
C6-2



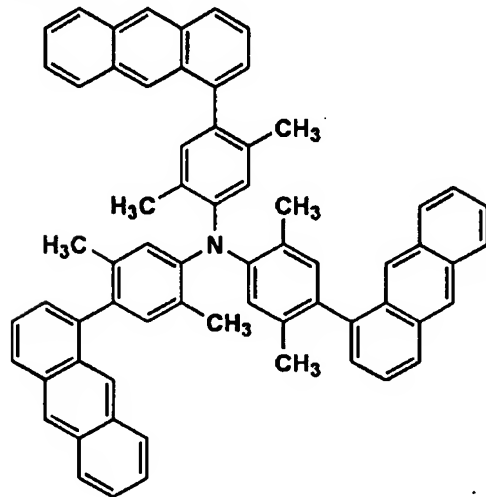
C6-3



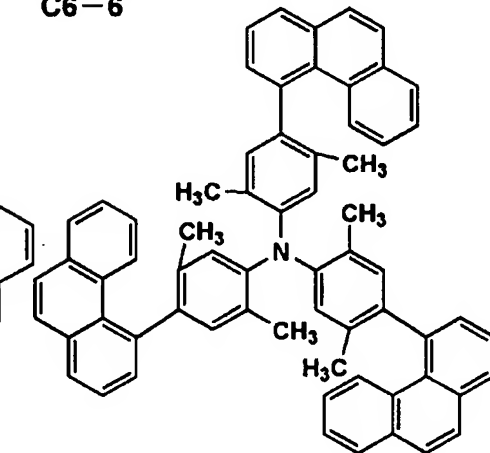
C6-4



C6-5



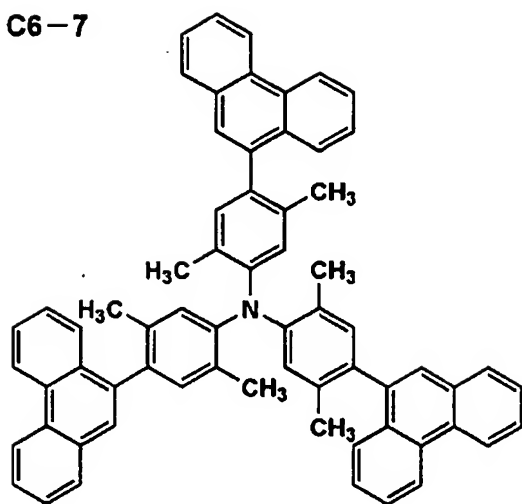
C6-6



【 0 6 1 5 】

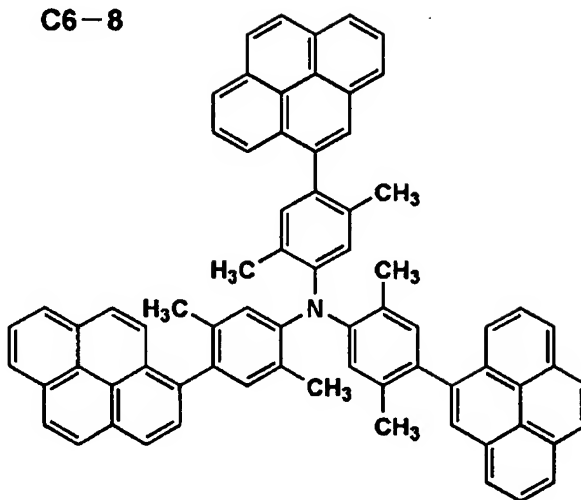
【 化 3 9 1 】

C6-7



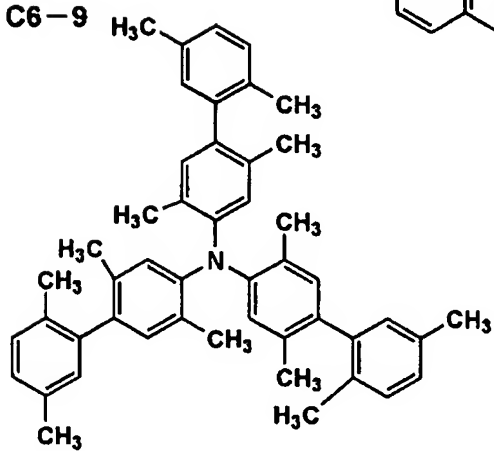
10

C6-8



20

C6-9



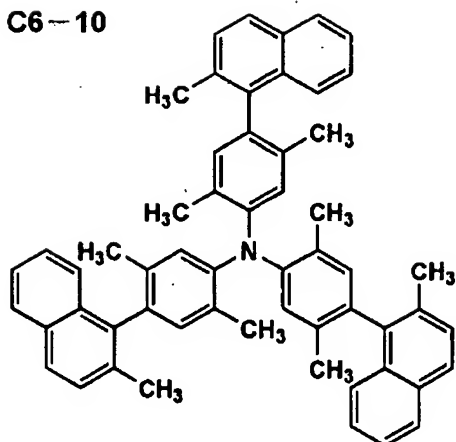
30

40

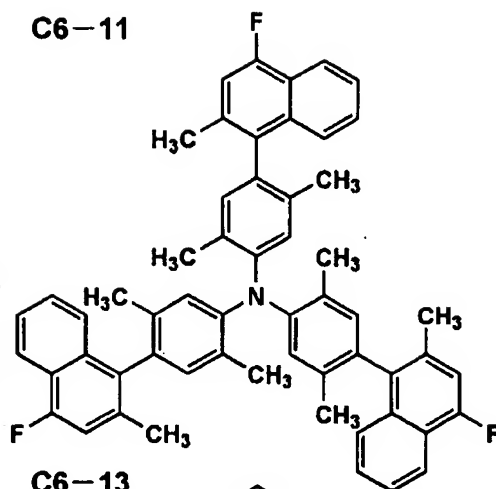
【 0 6 1 6 】

【 化 3 9 2 】

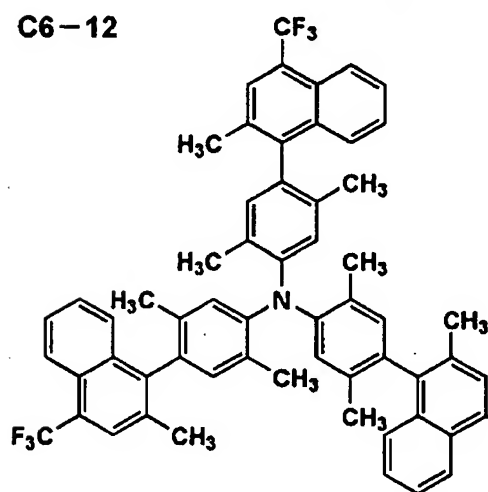
C6-10



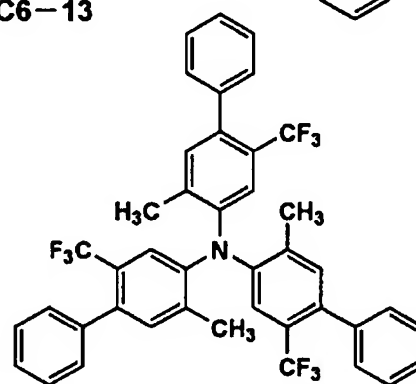
C6-11



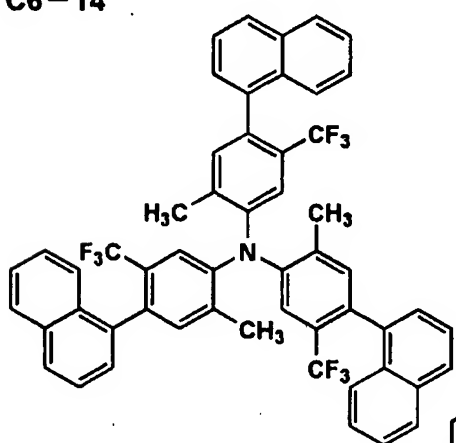
C6-12



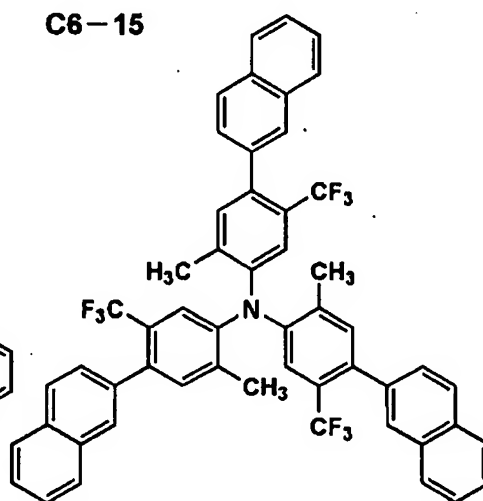
C6-13



C6-14



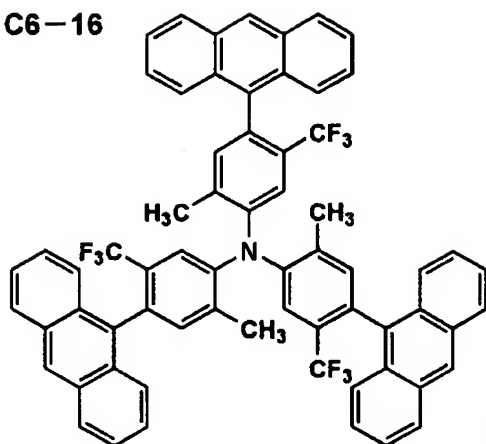
C6-15



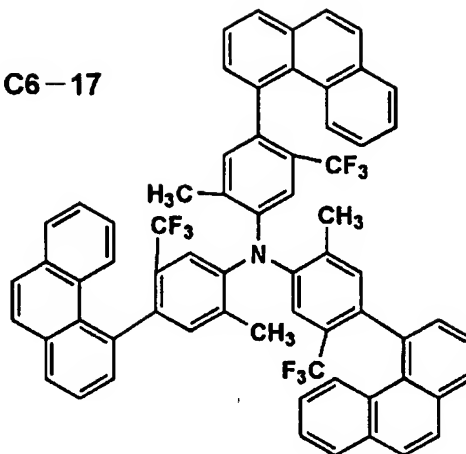
【 0 6 1 7 】

【 化 3 9 3 】

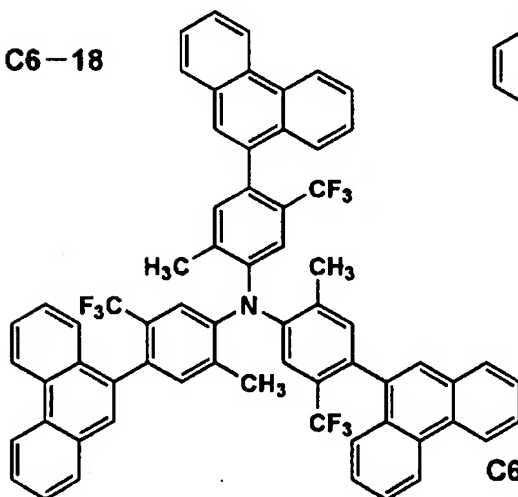
C6-16



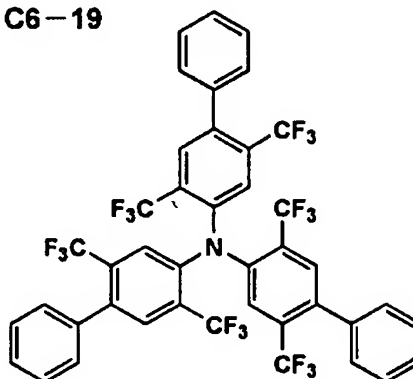
C6-17



C6-18



C6-19

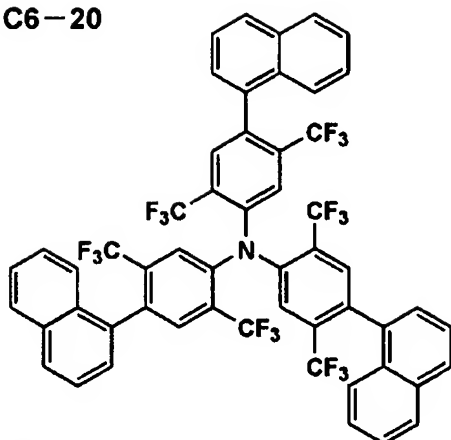


【 0 6 1 8 】

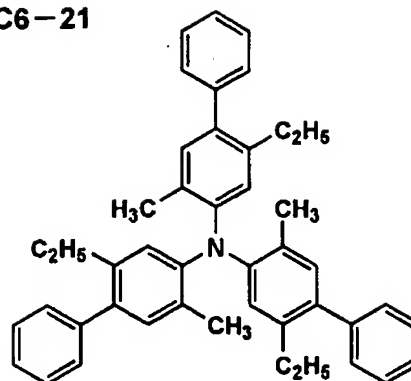
【 化 3 9 4 】



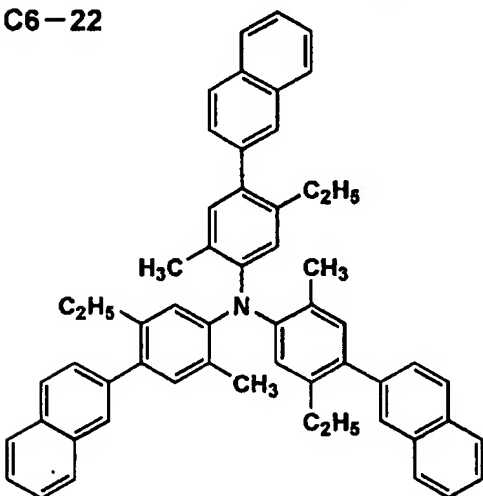
C6-20



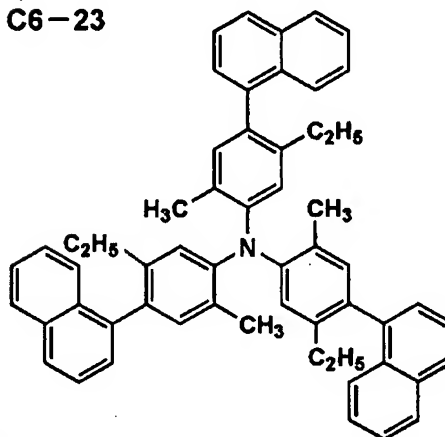
C6-21



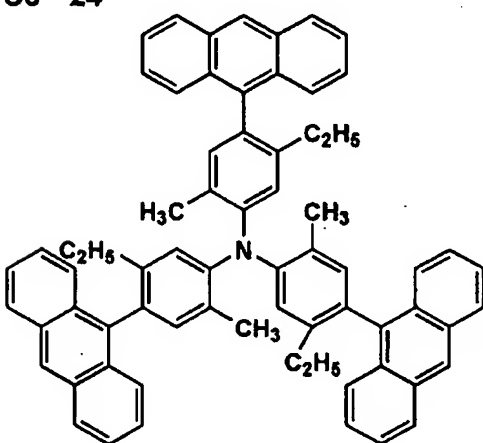
C6-22



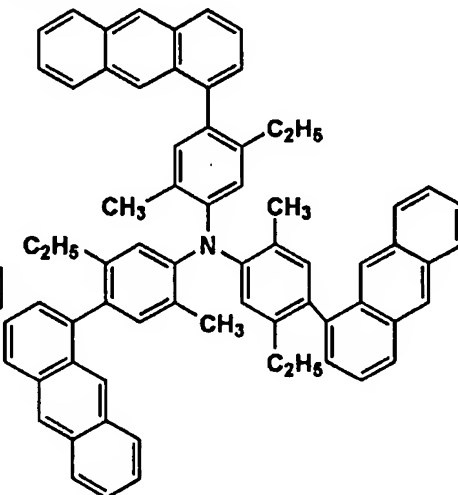
C6-23



C6-24



C6-25



[ 0 6 1 9 ]  
[ 化 3 9 5 ]

10

20

30

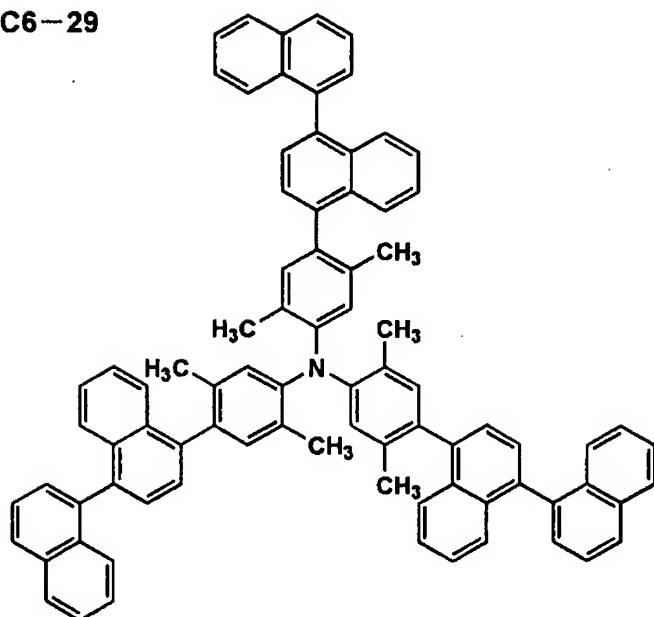
40

**C6-26**

Chemical structure of C6-26, a complex polycyclic aromatic hydrocarbon derivative. The structure features a central nitrogen atom bonded to four phenyl rings. The rings are substituted with various groups: a fluorenyl group, a 2-ethyl-6-methylphenyl group, a 2-ethyl-6-methylphenyl group, and a 2-ethyl-6-methylphenyl group. The structure is highly symmetrical and complex, with multiple fused ring systems.

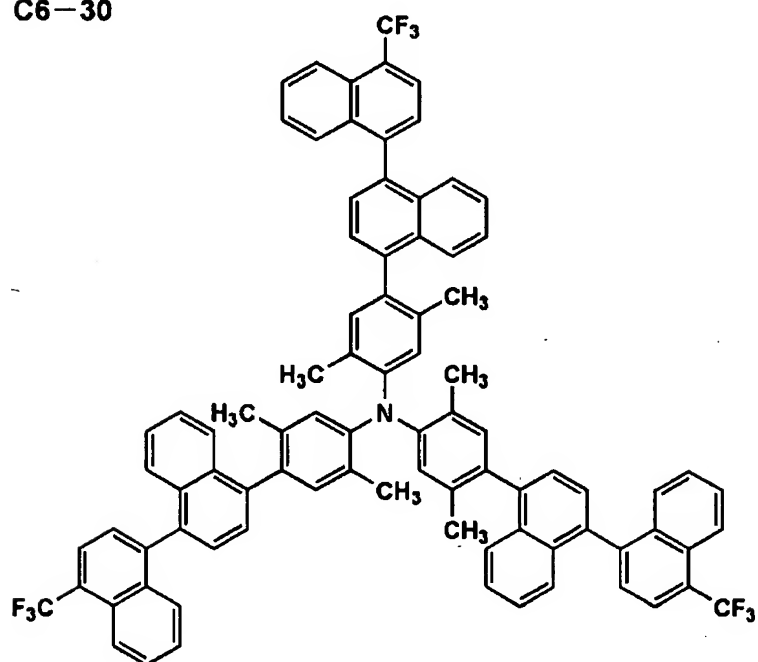
【化 3 9 6】

C6-29



10

C6-30



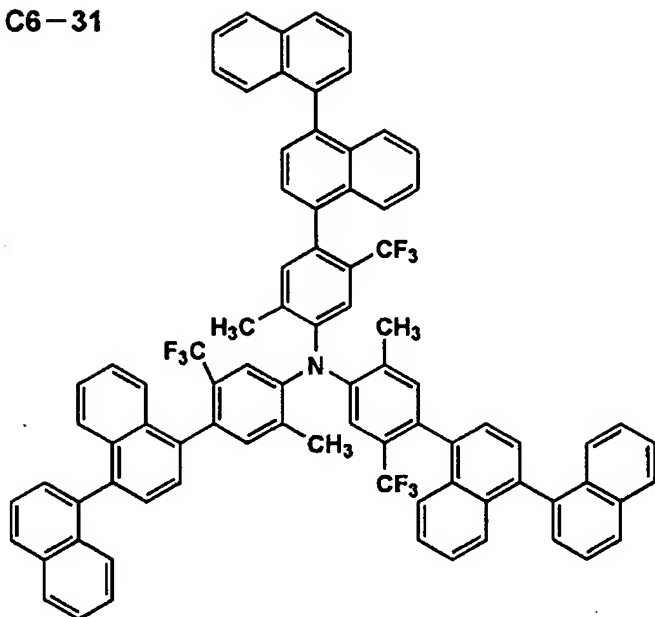
20

30

[ 0 6 2 1 ]  
[ 化 3 9 7 ]

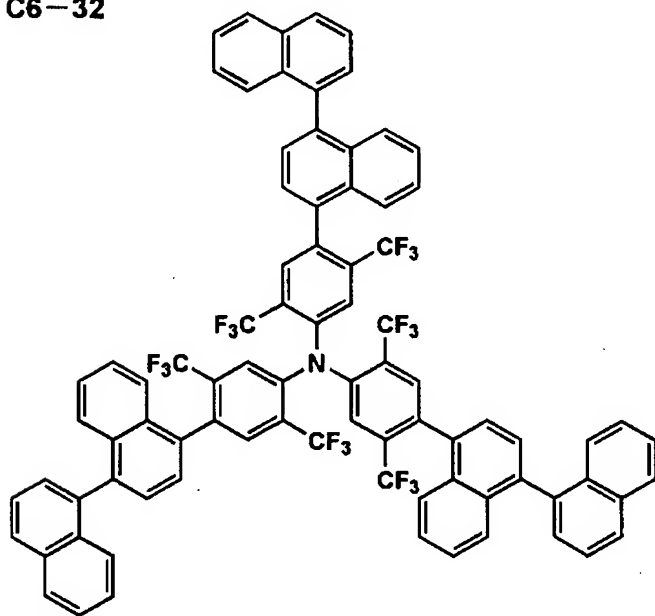
40

C6-31



10

C6-32



20

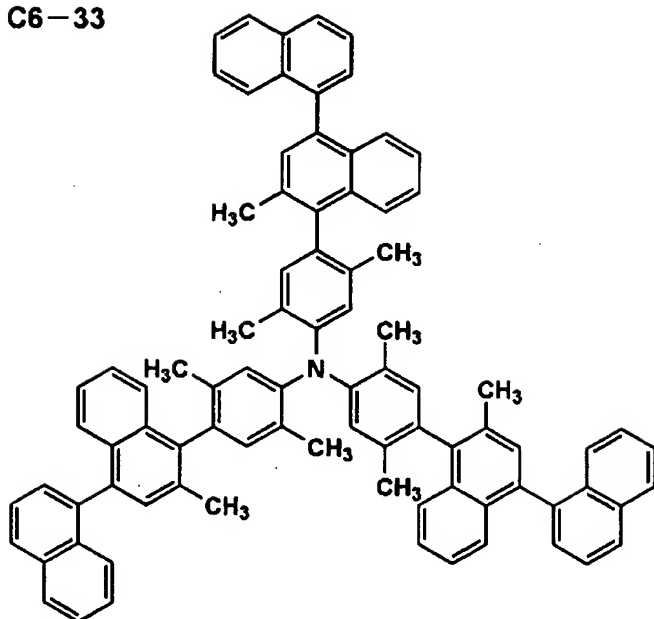
30

【 0 6 2 2 】

【 化 3 9 8 】

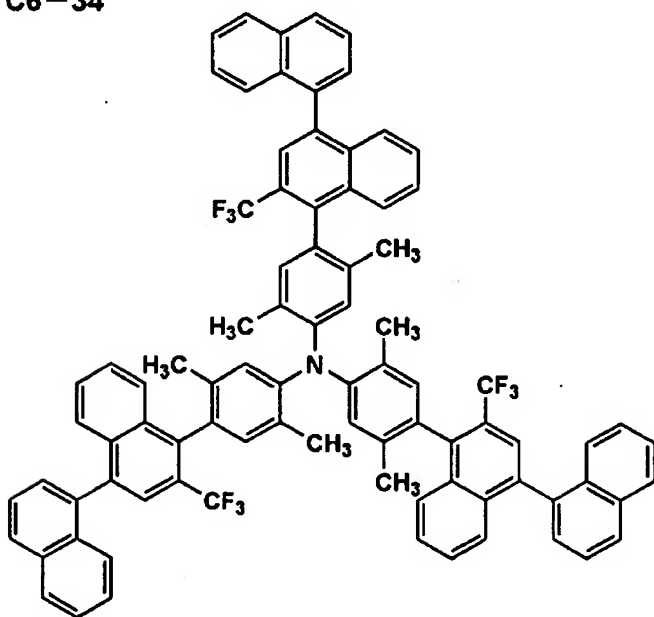
40

C6-33



10

C6-34



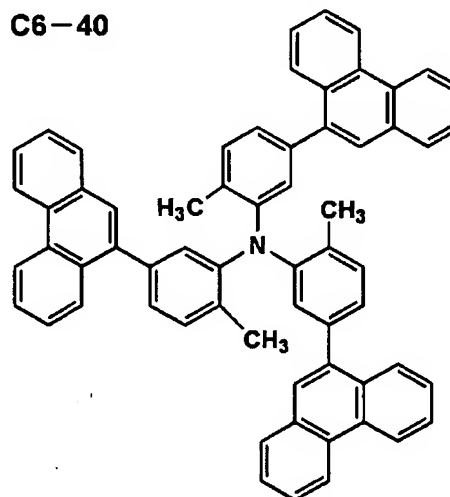
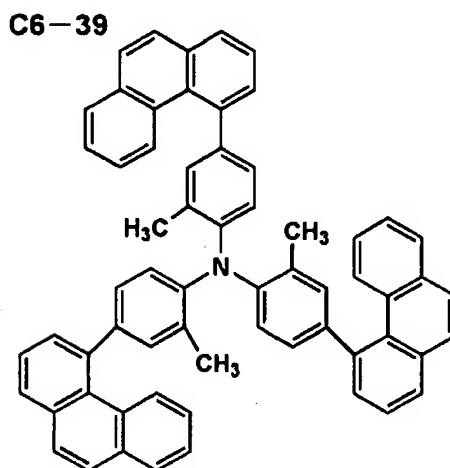
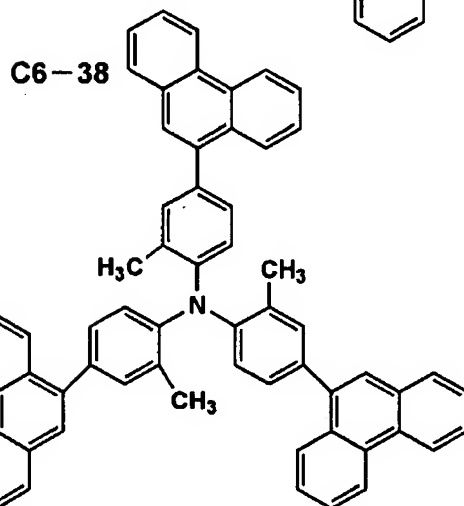
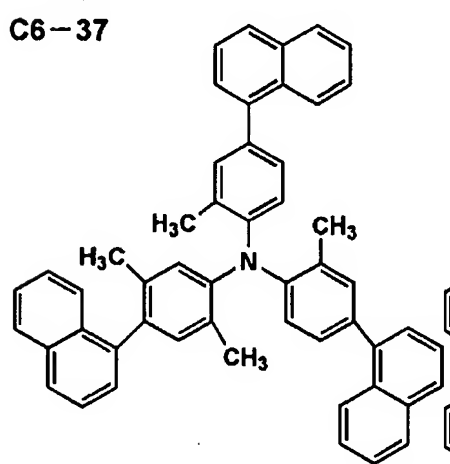
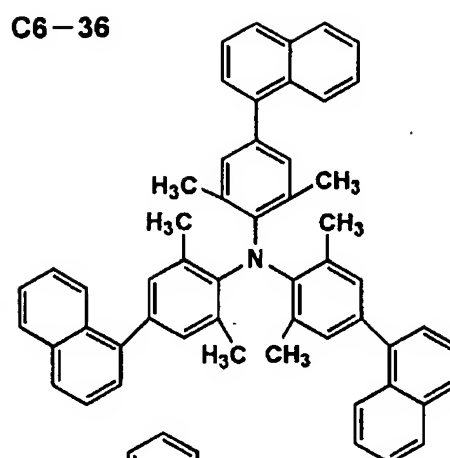
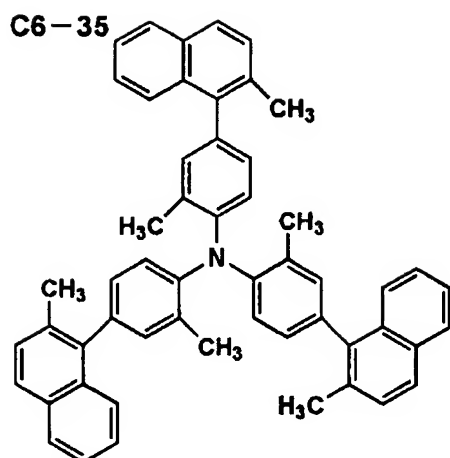
20

30

【 0 6 2 3 】

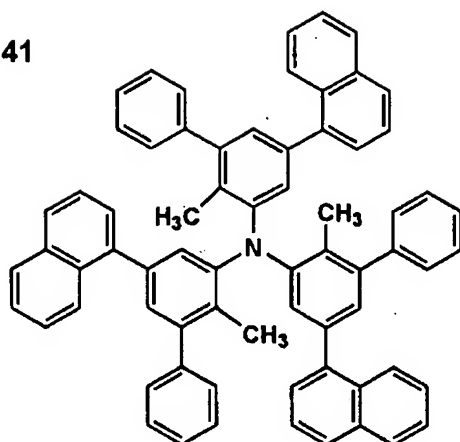
【 化 3 9 9 】

40



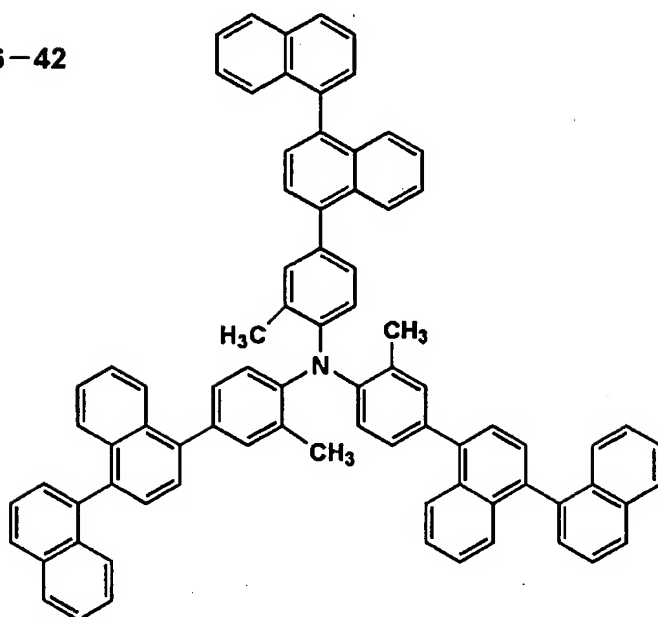
【 0 6 2 4 】  
【 化 4 0 0 】

C6-41



10

C6-42



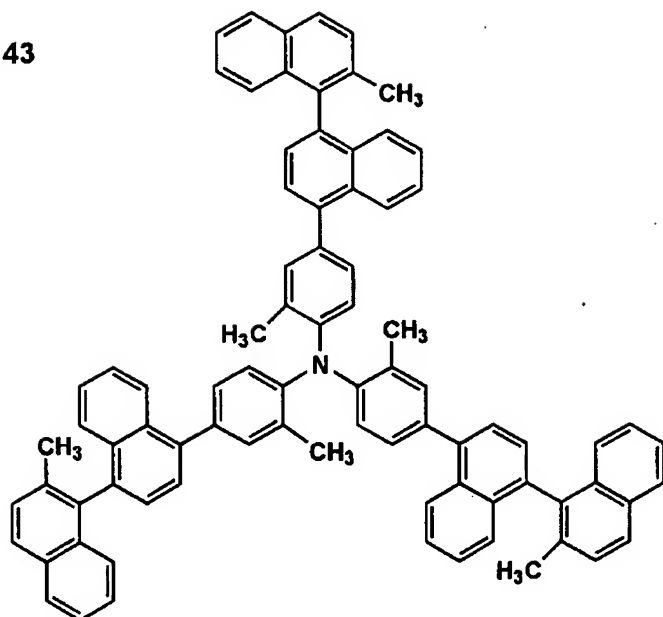
20

30

【 0 6 2 5 】

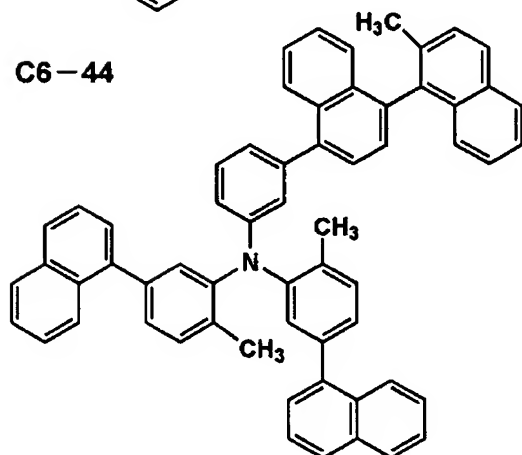
【 化 4 0 1 】

C6-43



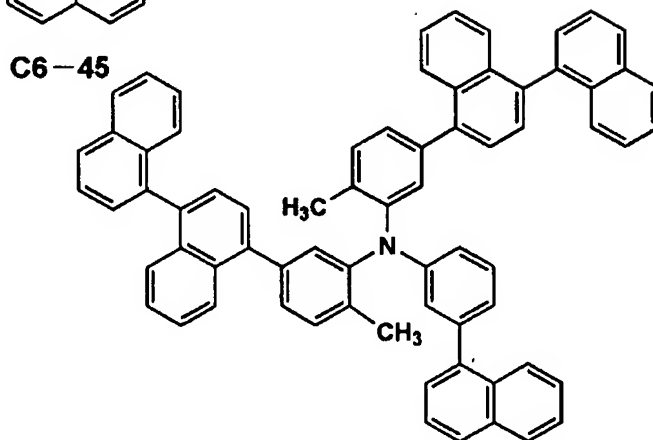
10

C6-44



20

C6-45

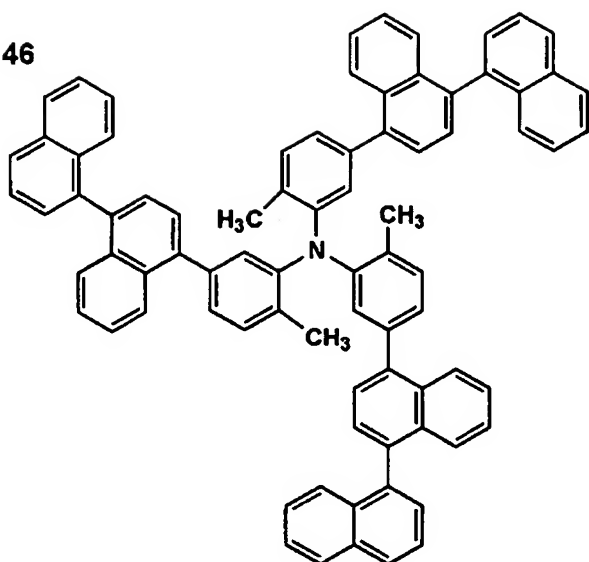


40

【 0 6 2 6 】  
【 化 4 0 2 】

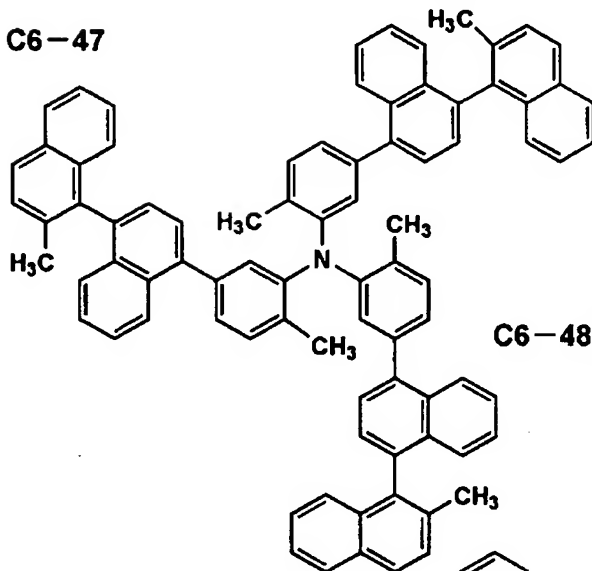


C6-46



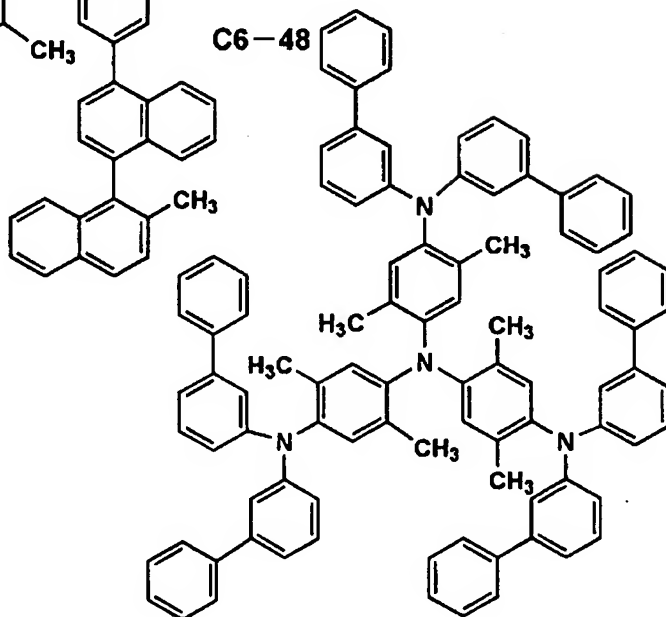
10

C6-47



20

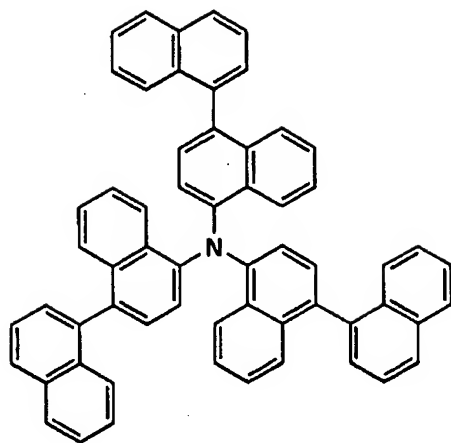
C6-48



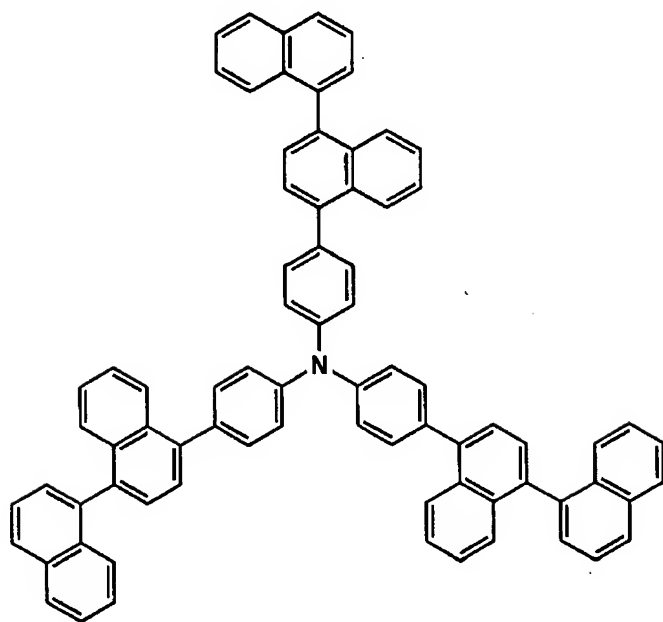
30

40

【 0 6 2 7 】  
【 化 4 0 3 】

**C6-49**

10

**C6-50**

20

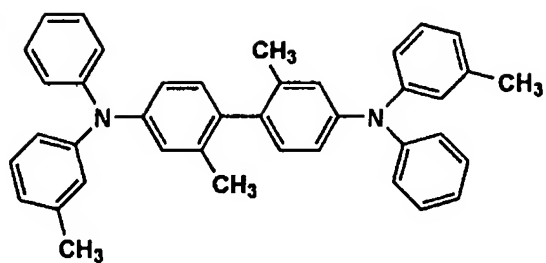
30

【 0 6 2 8 】

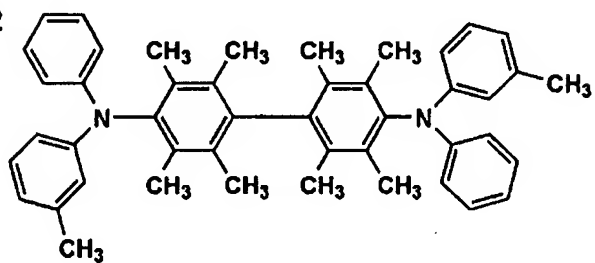
【 化 4 0 4 】

40

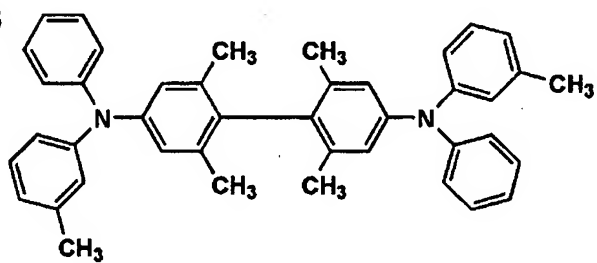
C6-NT-1



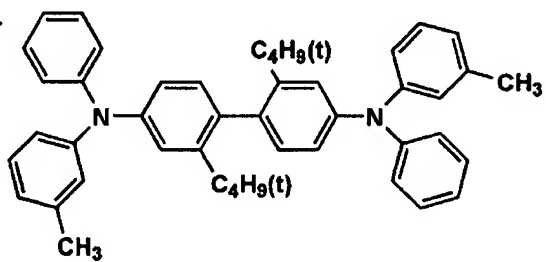
C6-NT-2



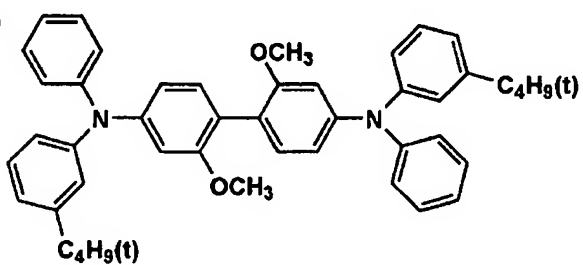
C6-NT-3



C6-NT-4

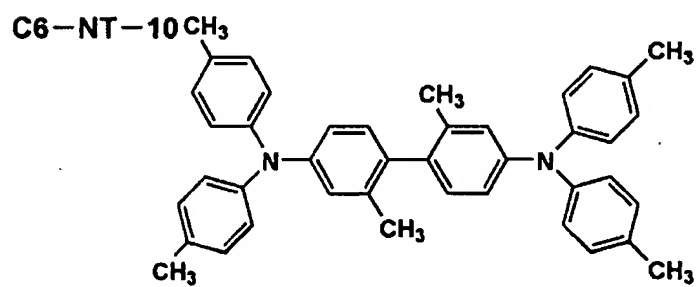
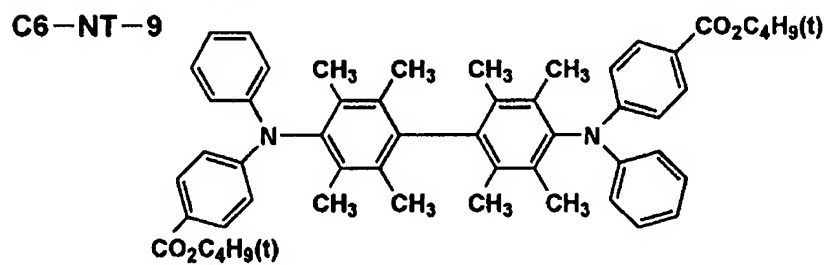
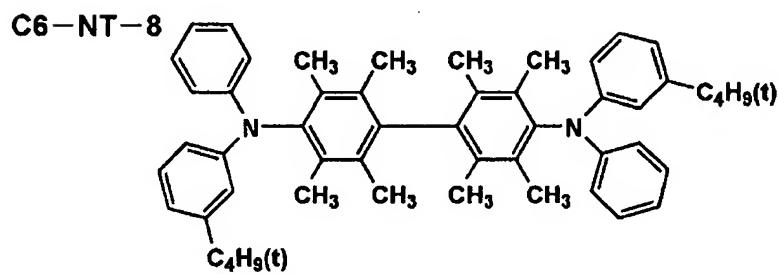
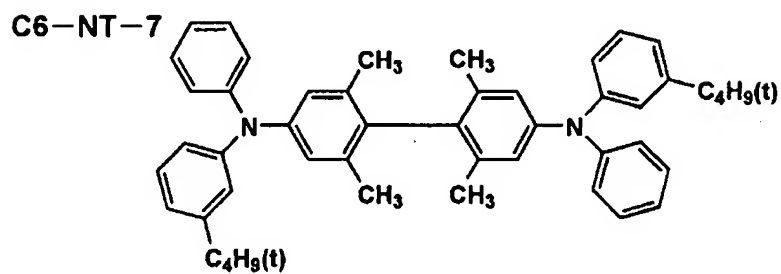
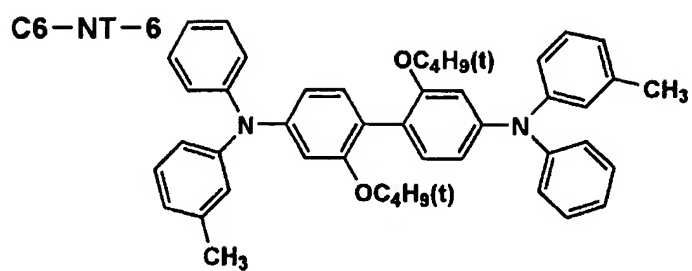


C6-NT-5



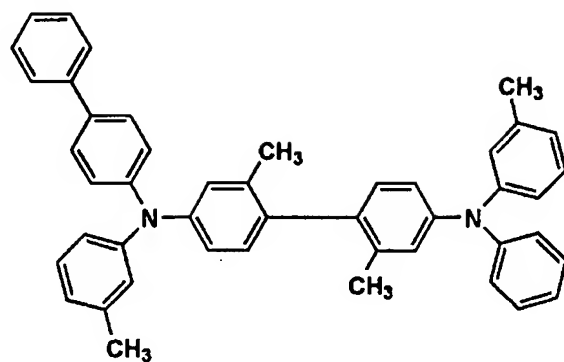
【 0 6 2 9 】

【 化 4 0 5 】



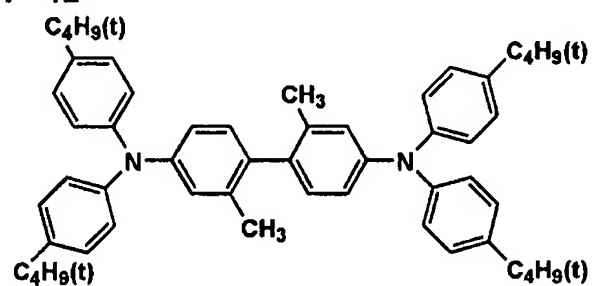
[ 0 6 3 0 ]  
[ 化 4 0 6 ]

C6-NT-11



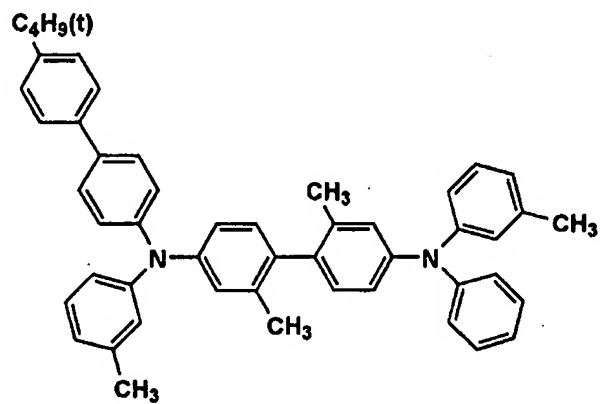
10

C6-NT-12



20

C6-NT-13

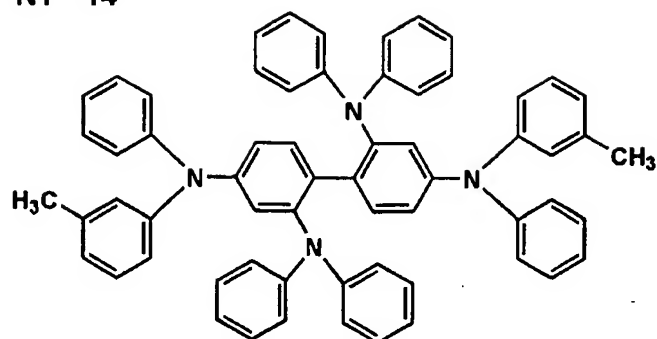


30

[ 0 6 3 1 ]  
[ 化 4 0 7 ]

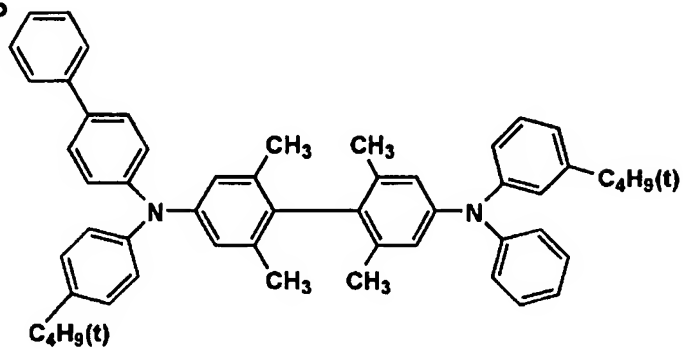
40

C6-NT-14



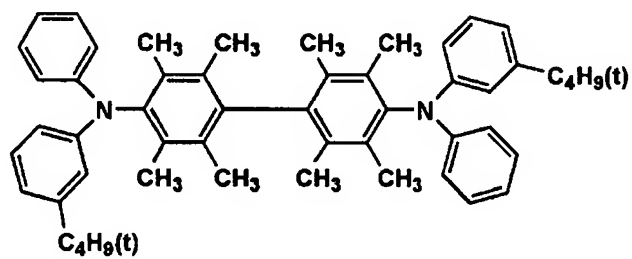
10

C6-NT-15



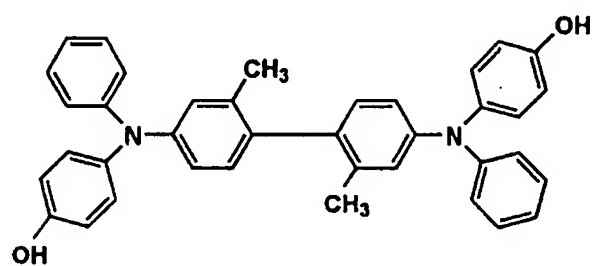
20

C6-NT-16



30

C6-NT-17

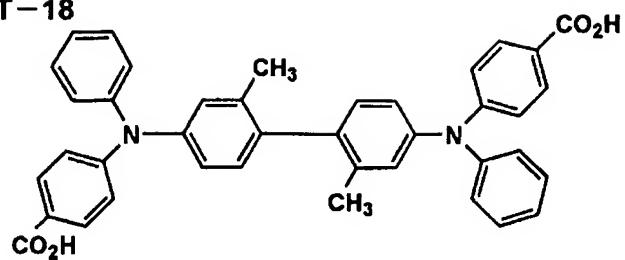


40

【 0 6 3 2 】

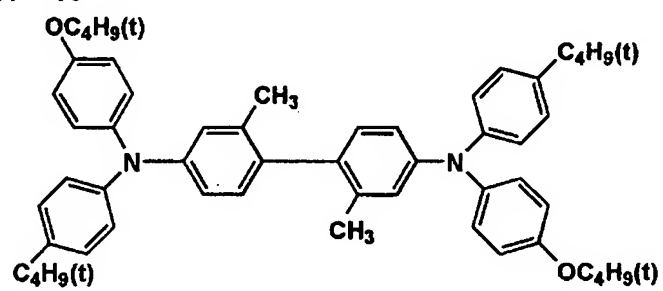
【 化 4 0 8 】

C6-NT-18



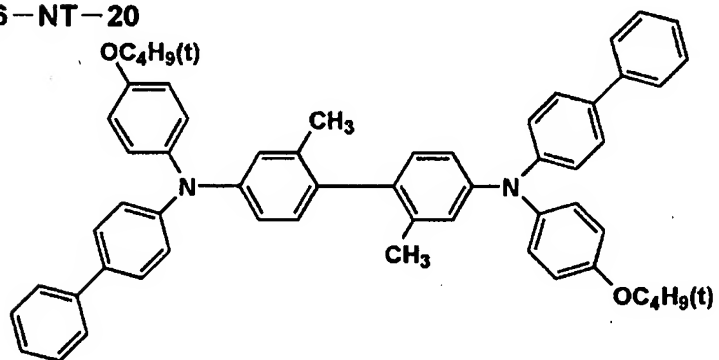
10

C6-NT-19



20

C6-NT-20

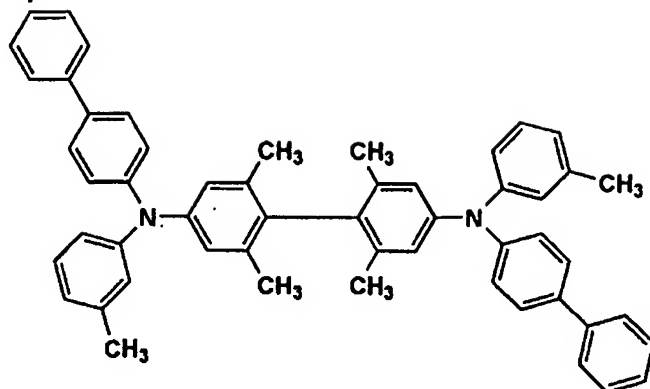


30

【 0 6 3 3 】

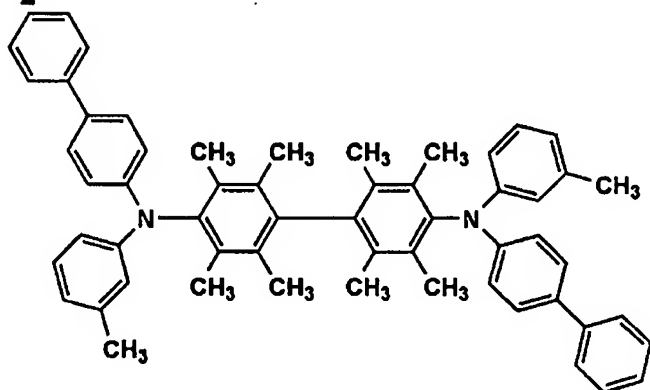
【 化 4 0 9 】

C6-NP-1



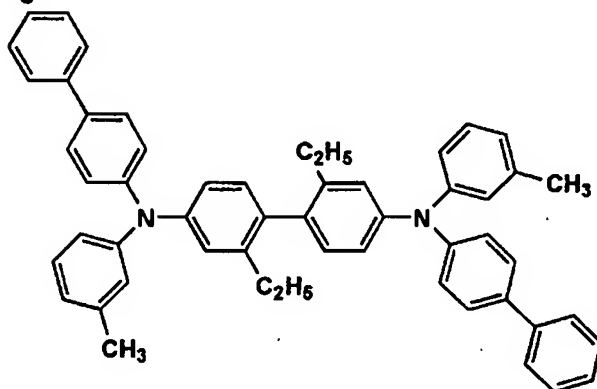
10

C6-NP-2



20

C6-NP-3



30

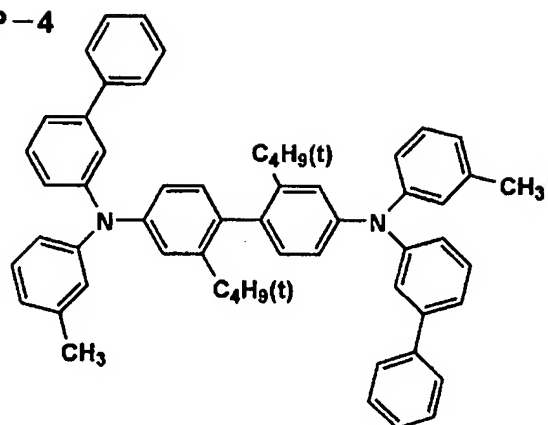
【 0 6 3 4 】

【 化 4 1 0 】

40

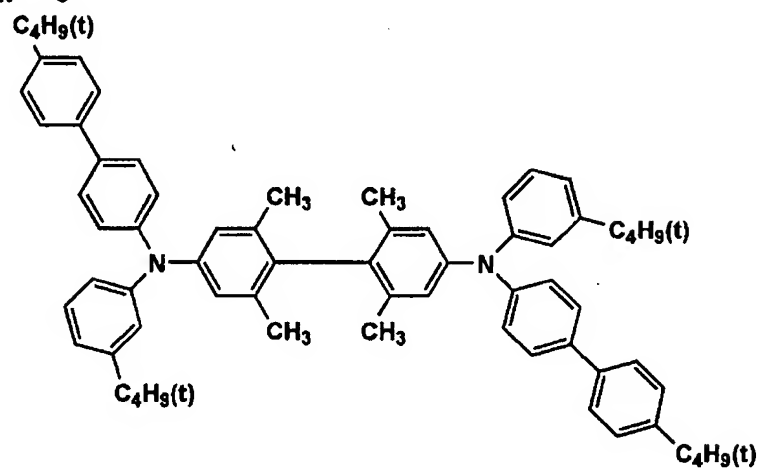


C6-NP-4



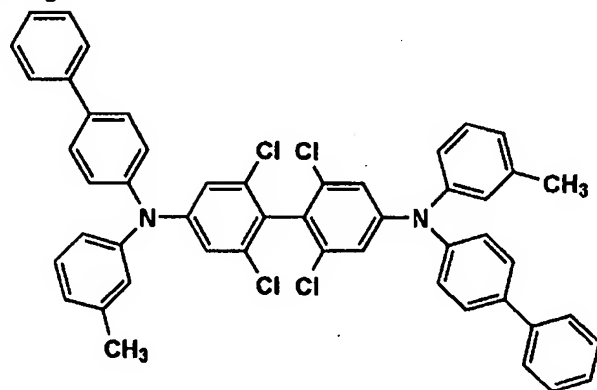
10

C6-NP-5



20

C6-NP-6



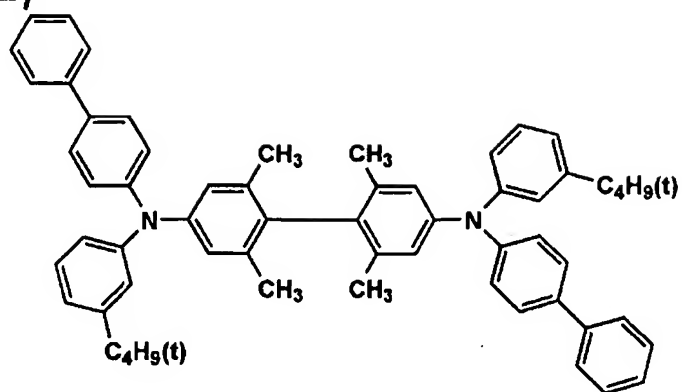
30

40

【 0 6 3 5 】

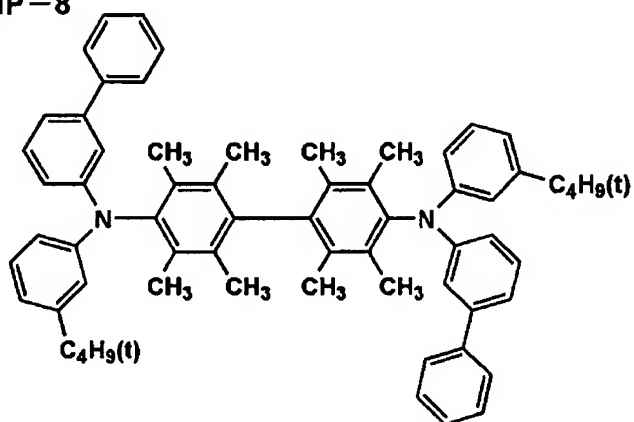
【 化 4 1 1 】

C6-NP-7



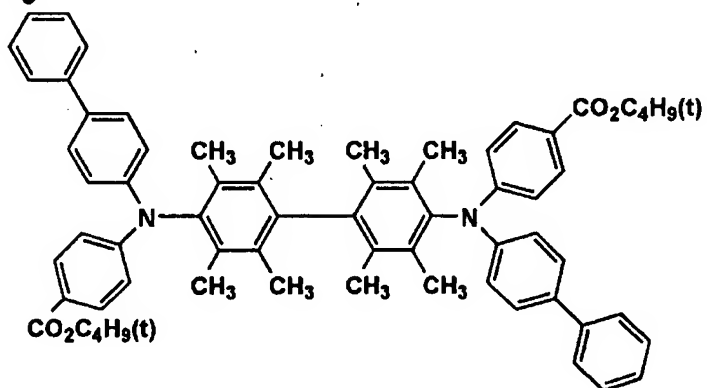
10

C6-NP-8



20

C6-NP-9



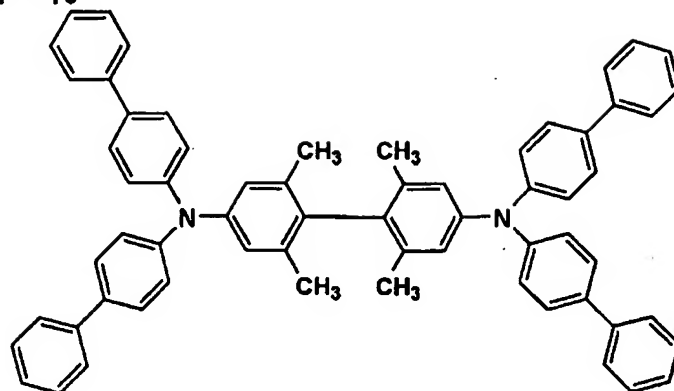
30

40

【 0 6 3 6 】

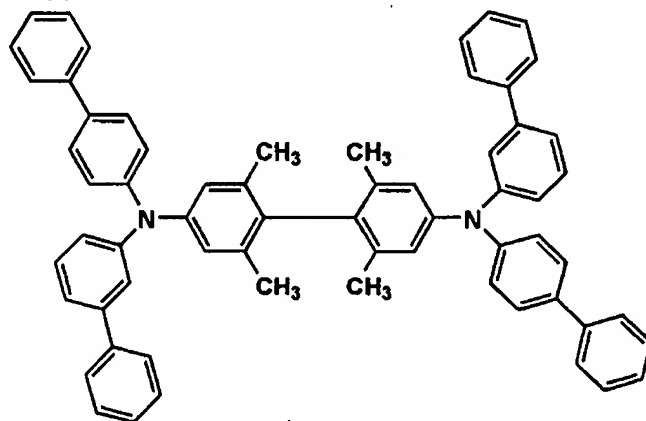
【 化 4 1 2 】

C6-NP-10



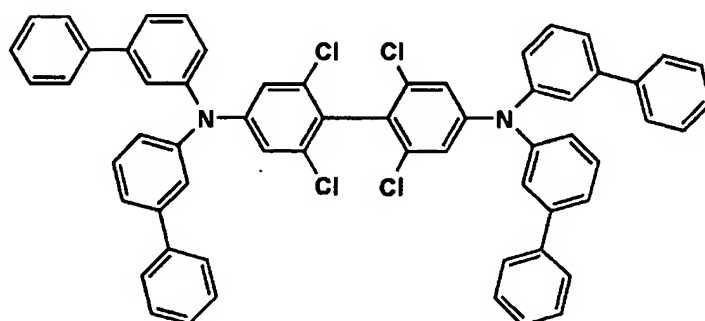
10

C6-NP-11



20

C6-NP-12



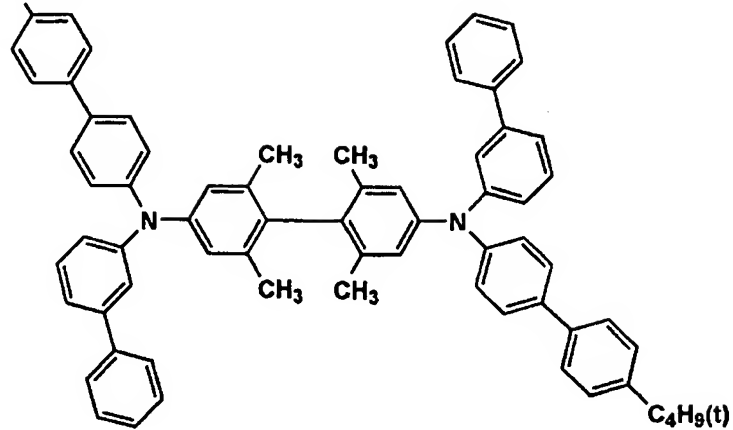
30

40

【 0 6 3 7 】

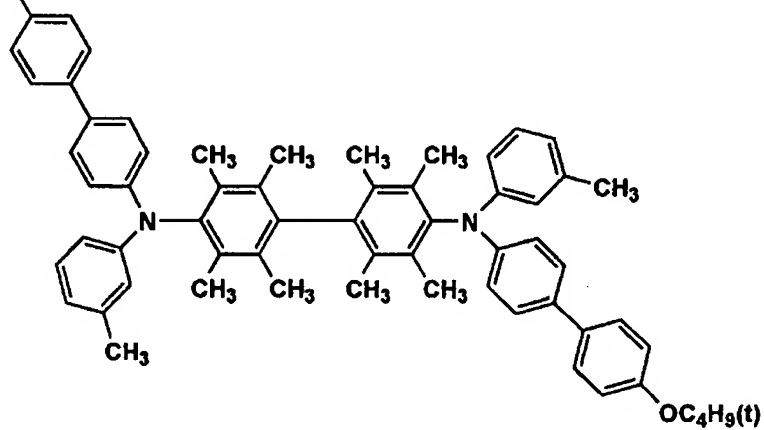
【 化 4 1 3 】

C6-NP-13

 $C_4H_9(t)$ 

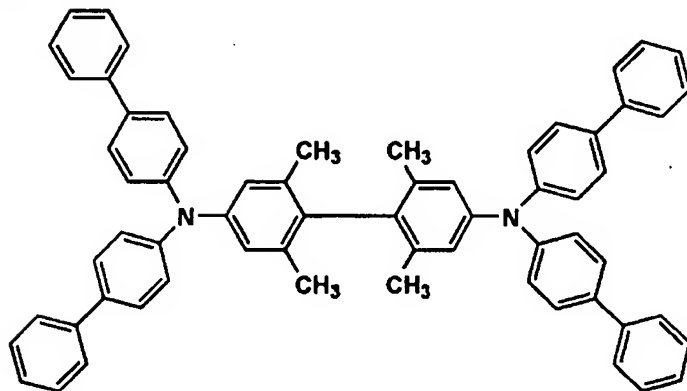
10

C6-NP-14

 $OC_4H_9(t)$ 

20

C6-NP-15



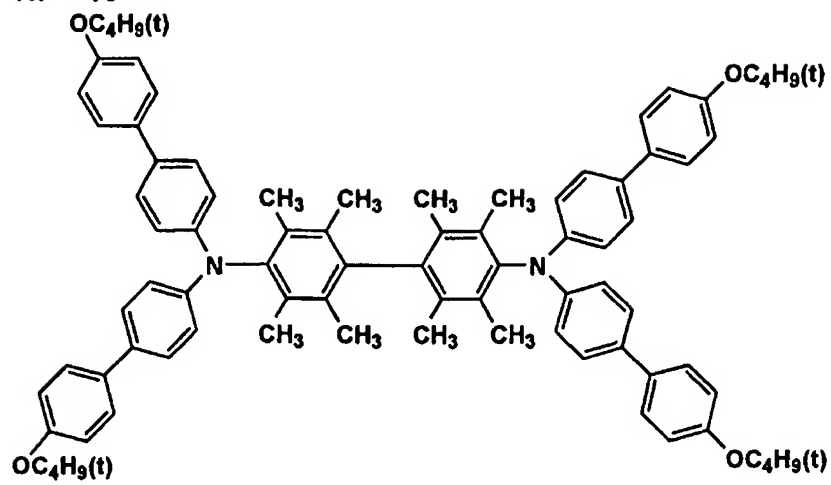
30

40

【 0 6 3 8 】

【 化 4 1 4 】

C6-NP-16



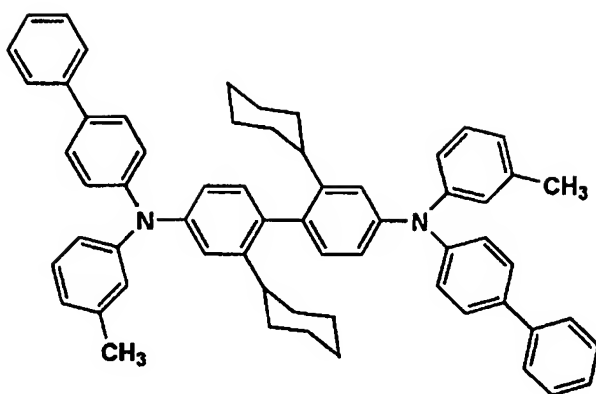
10

【 0 6 3 9 】

【 化 4 1 5 】

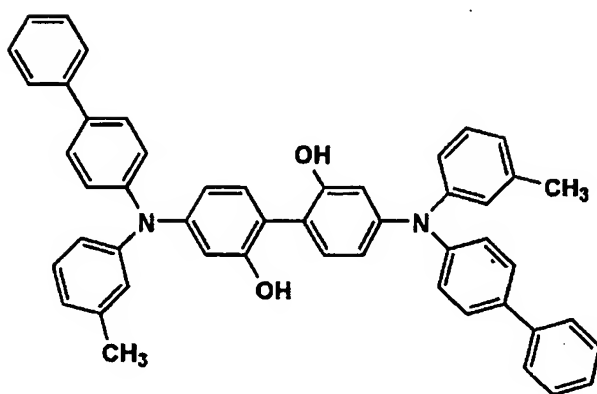
20

C6-5-1



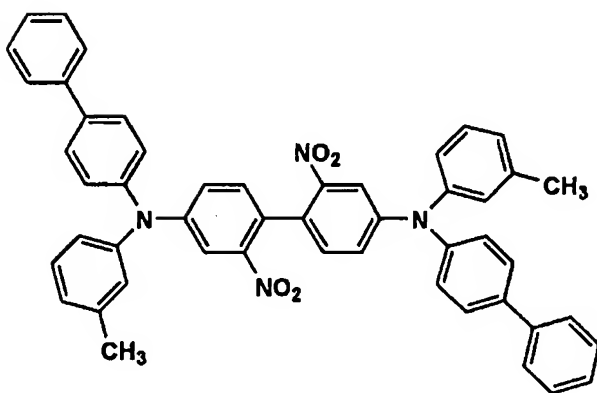
10

C6-5-2



20

C6-5-3



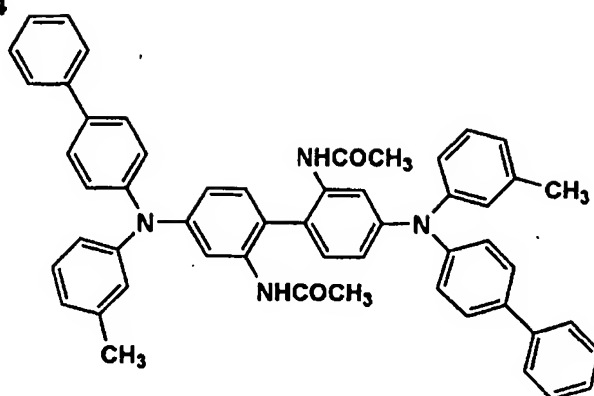
30

【 0 6 4 0 】

【 化 4 1 6 】

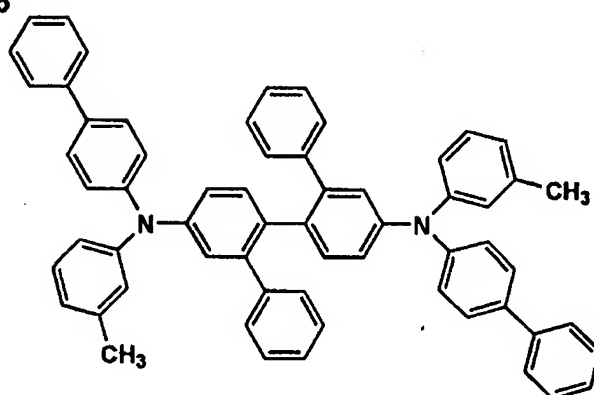
40

C6-5-4



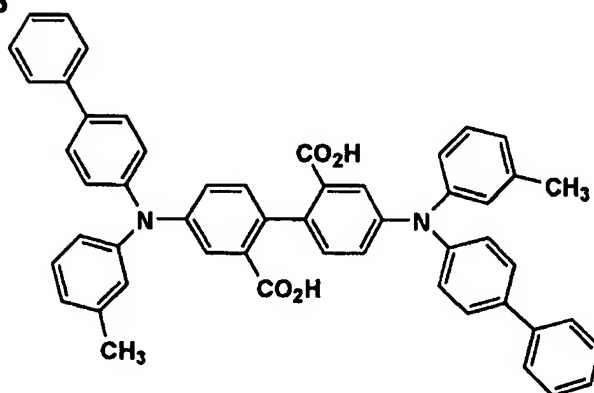
10

C6-5-5



20

C6-5-6



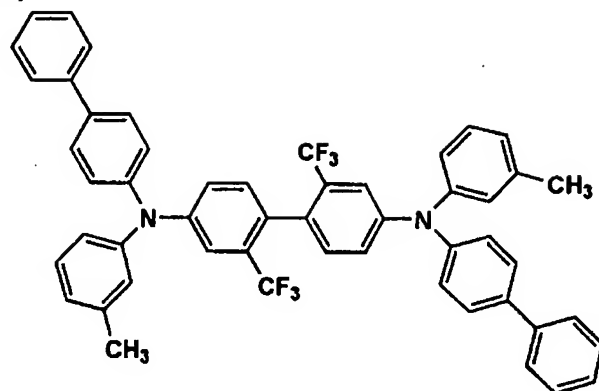
30

【 0 6 4 1 】

【 化 4 1 7 】

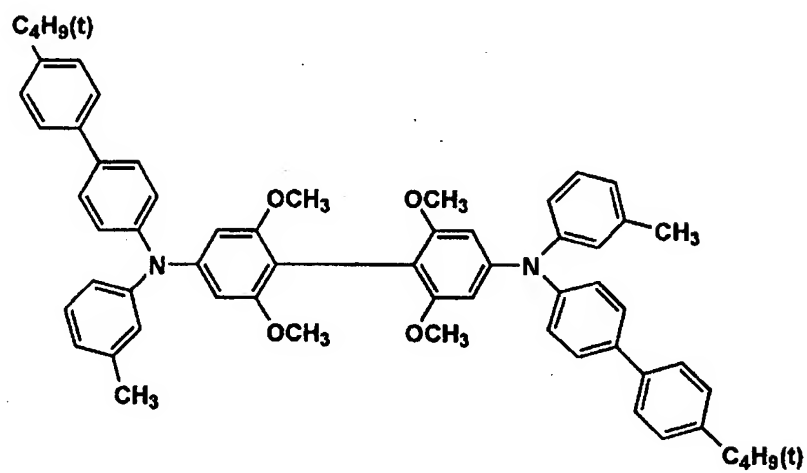
40

C6-5-7



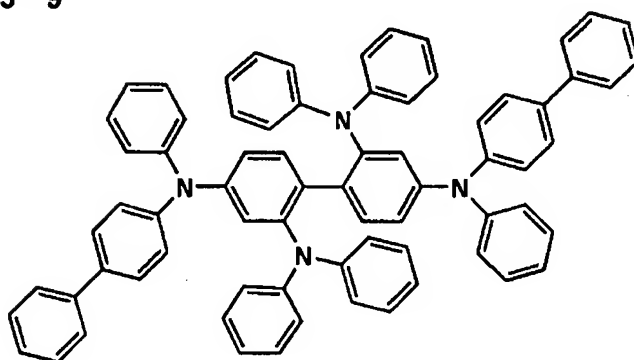
10

C6-5-8



20

C6-5-9



30

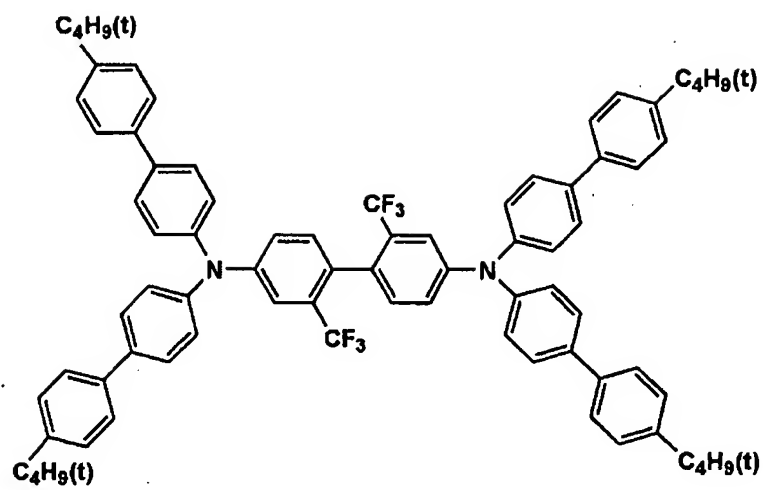
40

【 0 6 4 2 】

【 化 4 1 8 】

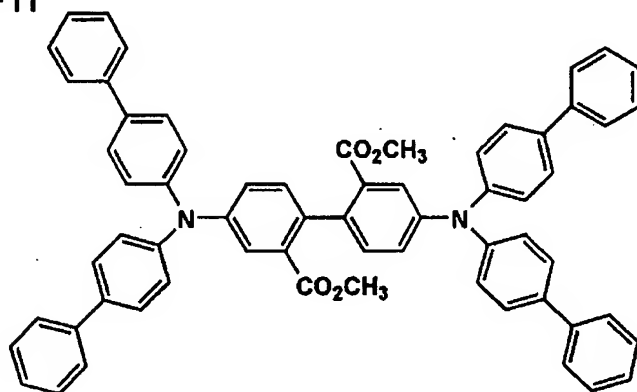


C6-5-10



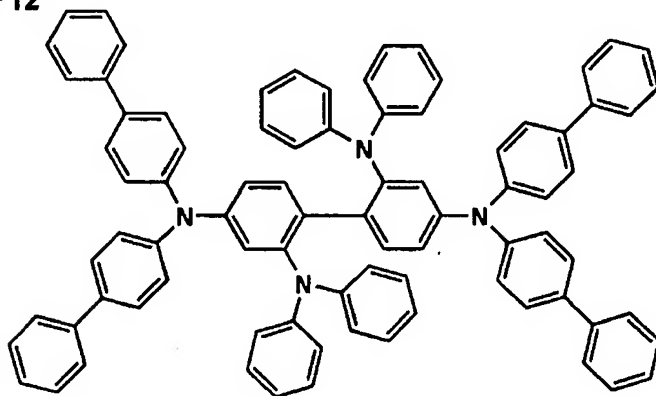
10

C6-5-11



20

C6-5-12



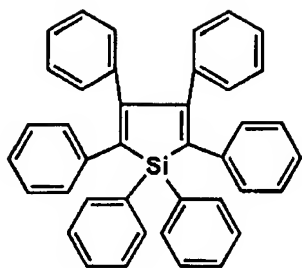
30

40

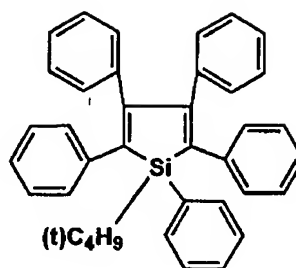
【 0 6 4 3 】

【 化 4 1 9 】

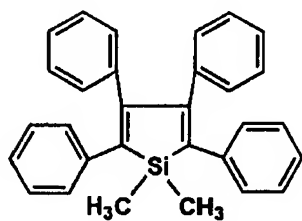
C6-2-1



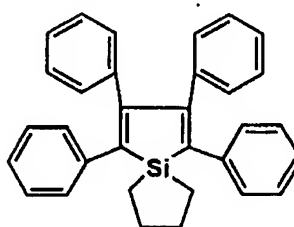
C6-2-2



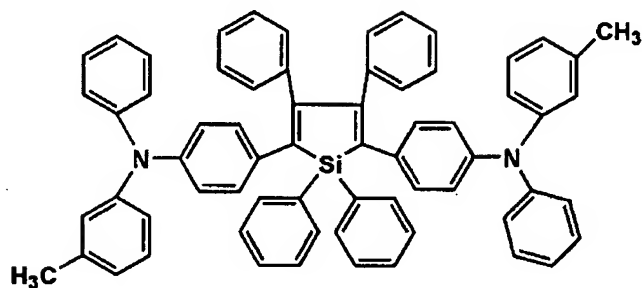
C6-2-3



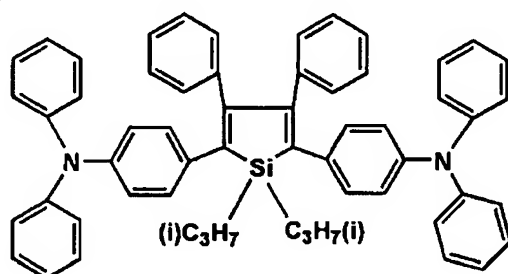
C6-2-4



C6-2-5



C6-2-6



【0644】

又、本発明に用いることのできる分子中の窒素原子数と炭素原子数の比 ( $N/C$ ) が 0 以上 0.05 以下である蛍光性化合物としては、前記一般式 (C6-I) ~ (C6-V) で表される化合物の他にも以下の様な化合物があげられる。

【0645】

【化420】

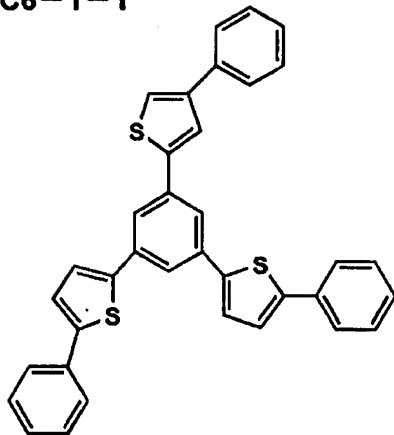
10

20

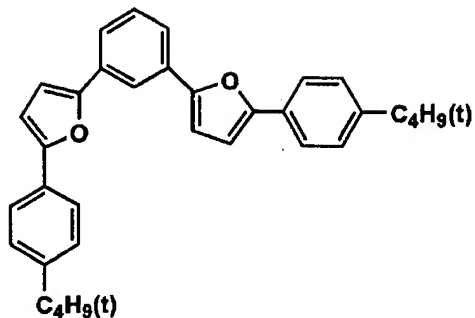
30

40

C6-1-1

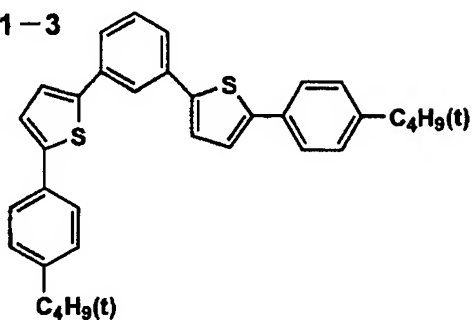


C6-1-2



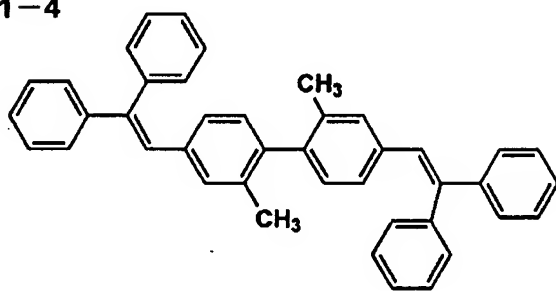
10

C6-1-3



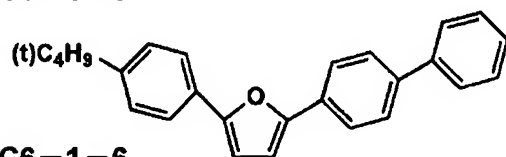
20

C6-1-4

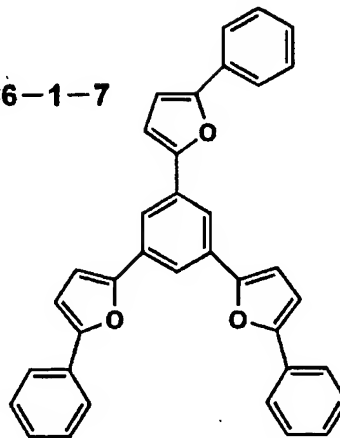


30

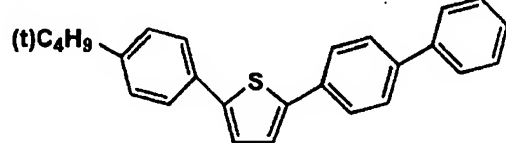
C6-1-5



C6-1-7



C6-1-6



40

## 【0646】

一般式 (C7-1) ~ (C7-3) で表される化合物について説明する。式中、 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $Z_3$ 、 $Z_4$ 、 $Z_5$ 、 $Z_6$  は各々環を形成するに必要な原子群を表し、 $Z_1$ 、 $Z_2$  のいずれか一方、 $Z_3$ 、 $Z_4$  のいずれか一方、 $Z_5$ 、 $Z_6$  のいずれか一方は、少なくとも置換または無置換の、7~9員の非共役環であるか、または、このうち、 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $Z_5$  は、ヘテロ原子を2個以上有する共役の8員環である。 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $Z_3$ 、 $Z_4$ 、 $Z_5$ 、 $Z_6$

50

6 に置換基を有する場合、その置換基の  $\sigma p$  は、 $-0.90$  以上  $0.50$  以下である。 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $Z_3$ 、 $Z_4$ 、 $Z_5$ 、 $Z_6$  で表される環を形成するに必要な原子群としては、3員以上の環であれば特に限定されるものではなく、炭素原子と水素原子のみで構成された炭化水素環でもよく、またヘテロ原子を含んでいる複素環でも良い。好ましくは5～12員の環である。また7～9員の非共役環は、炭素原子と水素原子のみで構成された炭化水素環でもよいし、ヘテロ原子を含んでいる複素環でも良いが、共役の8員環の場合は、ヘテロ原子が必ず2個以上含まれる。また、これらは任意の置換基を複数個それぞれ独立に有していてもよい。

【0647】

また、一般式 (C7-1) ～ (C7-3) において、 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $Z_3$ 、 $Z_4$ 、 $Z_5$ 、 $Z_6$  の両方が、置換または無置換の、7～9員の非共役の環であるか、または、このうち、 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $Z_5$  はヘテロ原子を2個以上有する共役の8員環である場合であってもよい。

【0648】

一般式 (C7-1) ～ (C7-3) における  $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $Z_3$ 、 $Z_4$ 、 $Z_5$ 、 $Z_6$  は、単環でも縮合環でも良い。縮合環の場合は、複数の置換基が互いに縮合してさらに環を形成している場合であるが、単環であることが好ましい。 $n_1$ 、 $n_2$  は1以上の整数、 $n_3$  は0以上の整数である。 $n_1$ 、 $n_2$  は1の場合が好ましく、 $n_3$  は0の場合が好ましい。

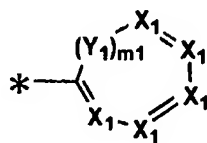
【0649】

また、前記一般式 (C7-1) ～ (C7-3) の、 $Z_1 \sim Z_6$  が下記一般式 (C7-5) ～ (C7-10) で表されることが好ましい。

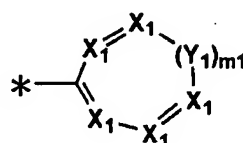
【0650】

【化421】

一般式(C7-5)

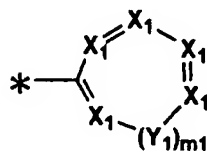


一般式(C7-6)

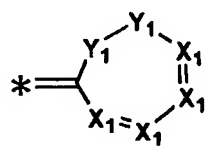


30

一般式(C7-7)

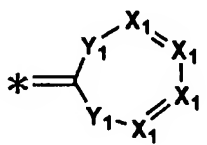


一般式(C7-8)

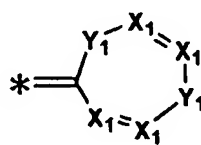


40

一般式(C7-9)



一般式(C7-10)



【0651】

50

式中、 $X_1$  は  $-CR_d=$  または  $-N=$ 、 $Y_1$  は  $-NR_e-$ 、 $-C(R_f)_2-$ 、 $-O-$  または  $-S-$  である。ただし、 $R_d$  は  $\sigma_p$  が  $-0.90$  以上  $0.50$  以下の置換基、 $R_e$ 、 $R_f$  は水素原子または置換基であり、 $m_1$  は  $1 \sim 3$  の整数、 $*$  は結合部位である。

【0652】

前記一般式 (C7-5) ~ (C7-10) の、 $R_d$  は  $\sigma_p$  が  $-0.90$  以上  $0.30$  以下の置換基である

前記一般式 (C7-5) ~ (C7-10) の、 $R_d$  は  $\sigma_p$  が  $-0.90$  以上  $0.00$  以下の置換基である。

【0653】

前記一般式 (C7-5) ~ (C7-10) において、 $m_1 = 1$  である。

10

【0654】

前記一般式 (C7-1) または (C7-3) における  $Z_1$ 、 $Z_2$  のうちいずれか一つ、または、 $Z_5$  が下記一般式 (C7-11) で表されることが好ましい。

【0655】

【化422】

### 一般式(C7-11)



20

【0656】

式中、 $R_{c1}$  は水素原子または置換基であり、 $n_4$  は  $1 \sim 5$  の整数である。

【0657】

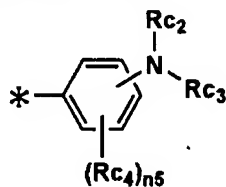
前記一般式 (C7-1) または (C7-3) における  $Z_1$ 、 $Z_2$  のうちいずれか一つ、または、 $Z_5$  は下記一般式 (C7-12) で表されることが更に好ましい。

【0658】

【化423】

30

### 一般式(C7-12)



40

【0659】

式中、 $R_{c2}$ 、 $R_{c3}$ 、 $R_{c4}$  は水素原子または置換基であり、 $n_5$  は  $1 \sim 4$  の整数である。

【0660】

一般式 (C7-1) ~ (C7-3) において、 $R_{a1}$ 、 $R_{a2}$ 、 $R_{a3}$ 、 $R_{a4}$ 、 $R_{a5}$ 、 $R_{a6}$ 、 $R_{a7}$  はそれぞれ水素原子または置換基を表す。 $R_{a1}$ 、 $R_{a2}$ 、 $R_{a3}$ 、 $R_{a4}$ 、 $R_{a5}$ 、 $R_{a6}$ 、 $R_{a7}$  は、各々独立して、水素原子または置換基を表すが、 $R_{a1} \sim R_{a7}$  で表される置換基としては、アルキル基 (例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロ- $n$ -ブチル基、パーフルオロ- $t$ -ブチル基、 $t$ -ブチル

50

基等)、シクロアルキル基(例えばシクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アラルキル基(例えばベンジル基、2-フェネチル基等)、アリール基(例えばフェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等)、アルコキシ基(例えばエトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(例えばフェノキシ基等)、アミノ基(ジメチルアミノ基、ジアリールアミノ基)、水酸基、ハロゲン原子(フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)等が挙げられる。これらの基はさらに置換されていてもよく、前記置換基としては、ハロゲン原子、トリフルオロメチル基、シアノ基、ニトロ基、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、ジベンジルアミノ基、ジアリールアミノ基、ジアルキルアミノ基等が挙げられる。

【0661】

$R_{a1} \sim R_{a7}$  は水素原子が好ましいが、置換基として好ましくは、アルキル基、アリール基である。

【0662】

$X_1$  は  $-CR_a=$  または  $-N=$ 、 $Y_1$  は  $-NR_b-$  または  $-C(R_c)_2-$  である。ただし、 $R_a$  は  $\sigma_p$  が  $-0.90$  以上  $0.50$  以下の置換基、 $R_b$ 、 $R_c$  は水素原子または置換基、 $m$  は  $1 \sim 3$  の整数、 $*$  は結合部位である。

【0663】

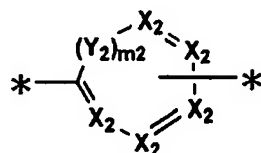
$R_b$ 、 $R_c$  及び一般式(C7-4)における  $R_{b1}$ 、 $R_{b2}$ 、 $R_{b3}$ 、 $R_{b4}$ 、 $R_{b5}$ 、 $R_{b6}$  は前記一般式(C7-1)における  $R_{a1}$ 、 $R_{a2}$  と同義である。

一般式(C7-4)におけるAで表される置換または無置換の、7～9員の非共役環、または、ヘテロ原子を2個以上有する共役の8員環において、Aが置換基を有する場合、その置換基の  $\sigma_p$  は、 $-0.90$  以上、 $0.50$  以下であり、好ましくは下記一般式(C7-16)～(C7-18)で表される。

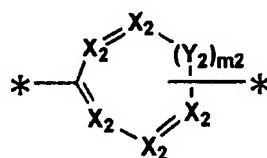
【0664】

【化424】

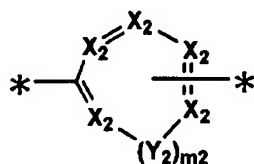
一般式(C7-16)



一般式(C7-17)



一般式(C7-18)



【0665】

式中、 $X_2$  は  $-CR_{d1}=$  または  $-N=$ 、 $Y_2$  は  $-NR_{e1}-$ 、 $-C(R_{f1})_2-$ 、 $-O-$  または  $-S-$  である。ただし、 $R_{d1}$ 、 $R_{e1}$ 、 $R_{f1}$  は水素原子または置換基であり、 $m2$  は  $1 \sim 3$  の整数、 $*$  は結合部位である。

【0666】

$R_{d1}$ 、 $R_{e1}$ 、 $R_{f1}$  が置換基を表す場合、その置換基の  $\sigma_p$  は、 $-0.90$  以上、 $0.50$  以下である。一般式(C7-11)、(C7-12)における  $R_{c1}$ 、 $R_{c2}$ 、 $R_{c3}$ 、 $R_{c4}$  は、前記一般式(C7-1)における  $R_{a1}$ 、 $R_{a2}$  と同義である。 $n4$  は

10

20

30

40

50

1～5の整数であり、n5は1～4の整数である。

【0667】

本発明において置換基の $\sigma_p$ 値が-0.9以上0.5以下の置換基の代表例としては、メチル基、エチル基、シクロプロピル基、n-プロピル基、iso-プロピル基、シクロブチル基、n-ブチル基、iso-ブチル基、n-ペンチル基、シクロヘキシル基、アミノ基（メチルアミノ基、オクチルアミノ基、アニリノ基、ジブチルアミノ基、アセチルアミノ基）、ウレイド基（例えばエチルウレイド基、オクチルウレイド基等）、ヒドロキシル基、アルキルオキシ基（メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ドデシルオキシ基、ベンジルオキシ基）ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子）、ホルミル基、カルバモイル基（例えば、カルバモイル、モルホリノカルバモイル、N-メチルカルバモイル等の各基）、アルコキシカルボニル基（例えば、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル等の各基）、アシル基（例えば、アセチル、ベンゾイル等の各基）等が挙げられる。

10

【0668】

好ましくは、上記の置換基の中でも-0.9以上0.3以下の置換基であり、更に好ましくは、上記の置換基の中で-0.9以上0.0以下の置換基である。

【0669】

$\sigma_p$ 値は、Hammett等によって安息香酸エステルの加水分解に及ぼす置換基の電子の効果から求められた置換基定数であり、ジャーナル・オブ・オーガニック・ケミストリー23巻、420-427（1958）、実験化学講座14巻（丸善出版社）、フィジカル・オーガニック・ケミストリー（McGraw Hill Book社：1940）、ドラックデザインVII巻（Academic Press New York：1976）、薬物の構造活性相関（南江堂：1979）、ジャーナル・オブ・メディカルケミストリー（Journal of Medical Chemistry）第20巻、304頁、1977年、記載のC. ハンシュ（C. Hansch）等に詳しく記載されている。

20

【0670】

また、本発明においては、前記一般式（C7-1）、（C7-2）または（C7-3）で表される化合物と共に、燐光性化合物（ドーパント若しくはゲスト化合物ともいう）或いは、素子となった状態での電界発光によって得られる発光波長が前記一般式（C7-1）、（C7-2）または（C7-3）で表される化合物の蛍光極大波長よりも長波である蛍光性化合物を用いることができる。

30

【0671】

前記一般式（C7-1）、（C7-2）及び（C7-3）における、 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $Z_3$ 、 $Z_4$ 、 $Z_5$ 、 $Z_6$ 及び $R_{a1}$ 、 $R_{a2}$ 、 $R_{a3}$ 、 $R_{a4}$ 、 $R_{a5}$ 、 $R_{a6}$ 、 $R_{a7}$ は前記の定義に加えて、更に $\sigma_p$ が-0.90以下0.50以上の置換基をも包含する。具体的には、シアノ基、トリフルオロメチル基、ニトロ基等が挙げられる。

【0672】

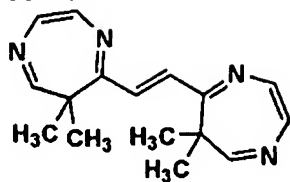
以下に、これらの化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。

【0673】

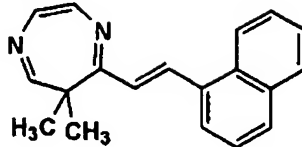
【化425】

40

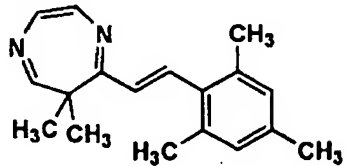
C7-A-1



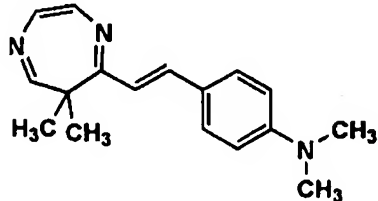
C7-A-2



C7-A-3

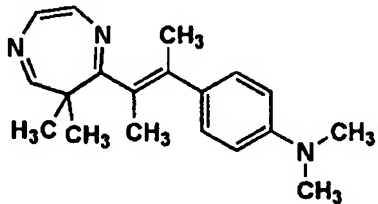


C7-A-4

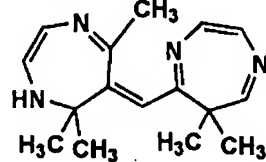


10

C7-A-5

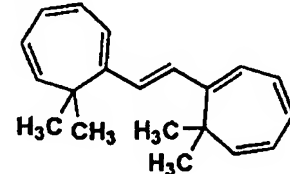


C7-A-6

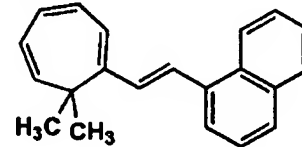


20

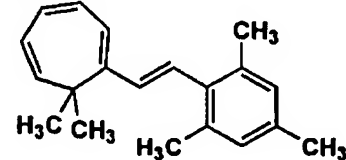
C7-A-7



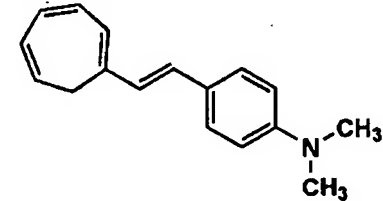
C7-A-8



C7-A-9

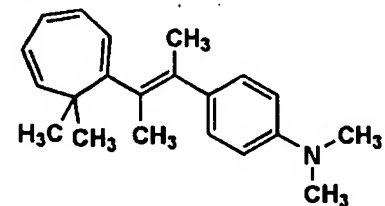


C7-A-10

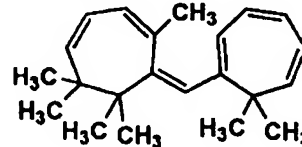


30

C7-A-11



C7-A-12



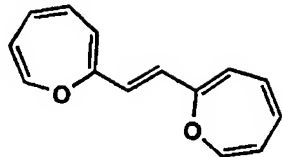
40

【 0 6 7 4 】

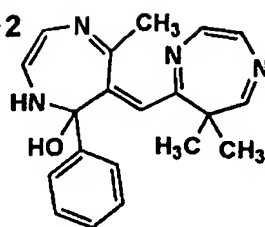
【 化 4 2 6 】



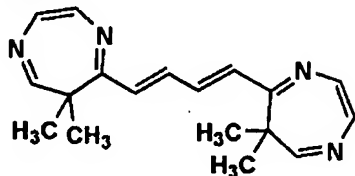
C7-B-1



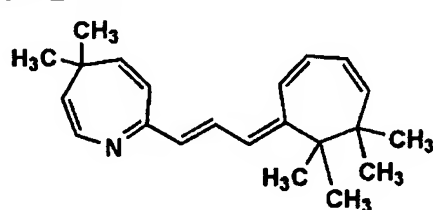
C7-B-2



C7-B-3

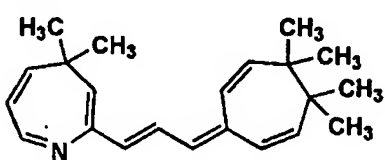


C7-B-4

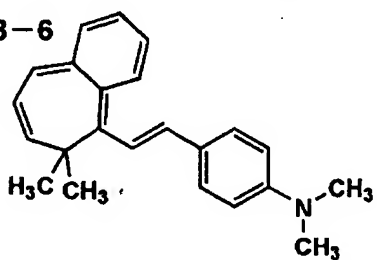


10

C7-B-5

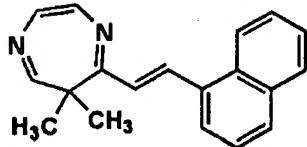


C7-B-6

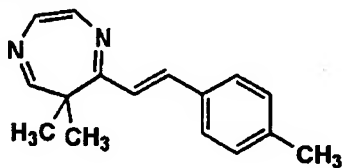


20

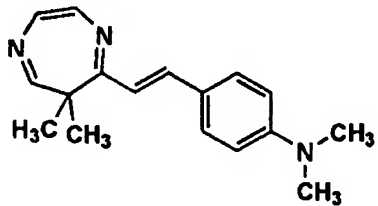
C7-B-7



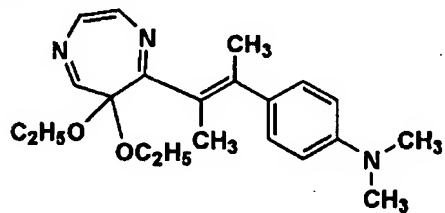
C7-B-8



C7-B-9

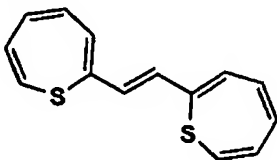


C7-B-10

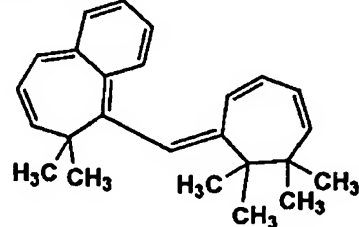


30

C7-B-11



C7-B-12

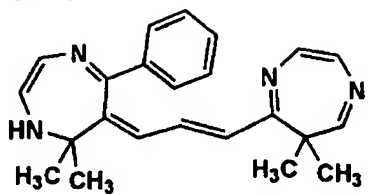


40

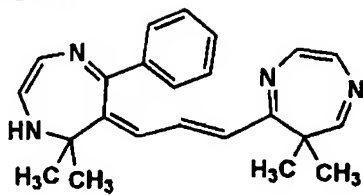
【 0 6 7 5 】

【 化 4 2 7 】

C7-C-1



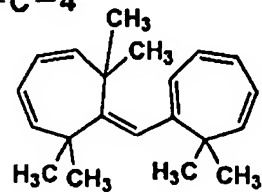
C7-C-2



C7-C-3

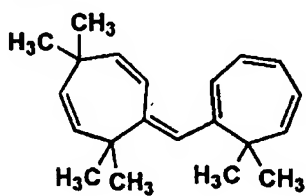


C7-C-4

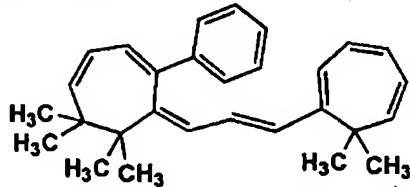


10

C7-C-5

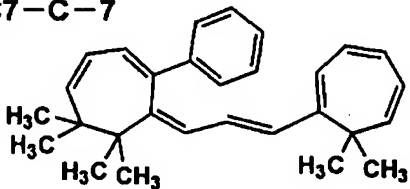


C7-C-6

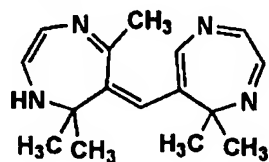


20

C7-C-7

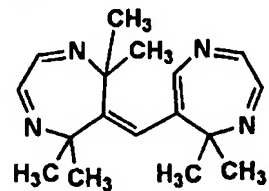


C7-C-8

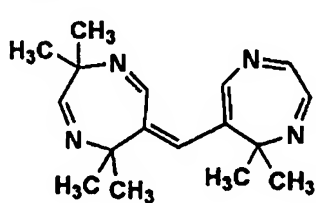


30

C7-C-9



C7-C-10

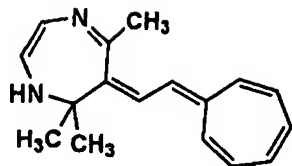


【 0 6 7 6 】

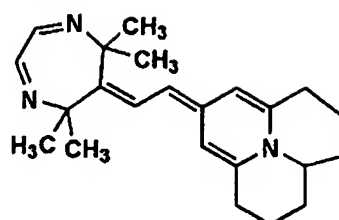
【 化 4 2 8 】

40

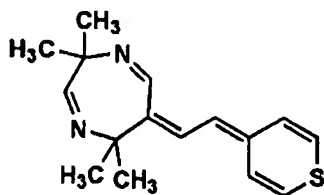
C7-D-1



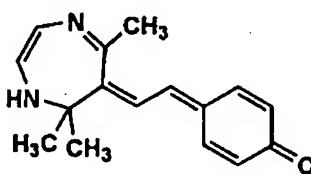
C7-D-2



C7-D-3

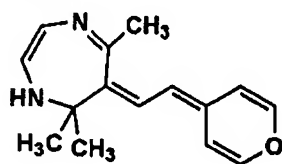


C7-D-4

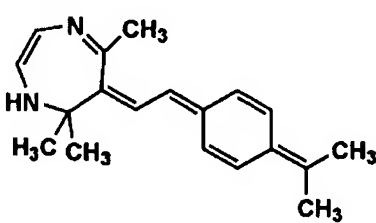


10

C7-D-5

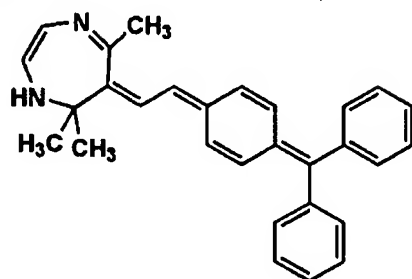


C7-D-6



20

C7-D-7

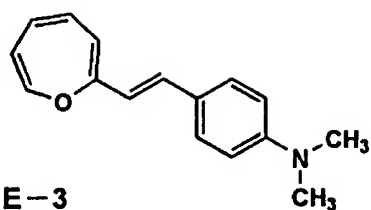


30

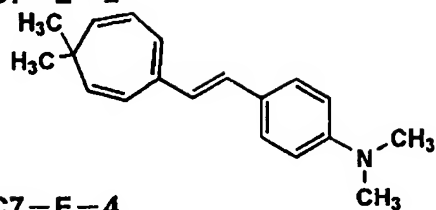
【 0 6 7 7 】

【 化 4 2 9 】

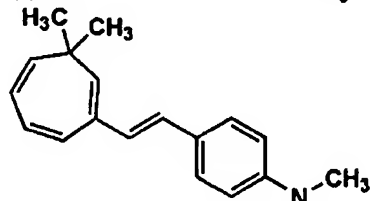
C7-E-1



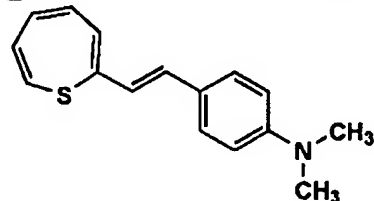
C7-E-2



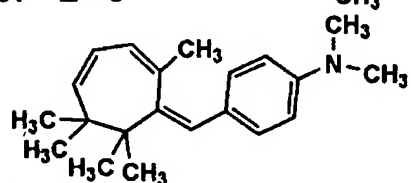
C7-E-3



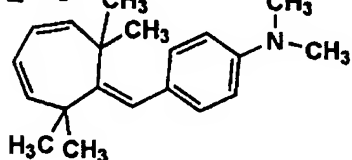
C7-E-4



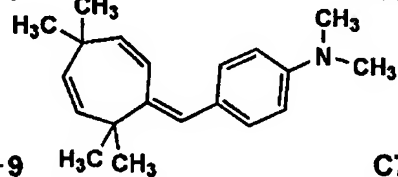
C7-E-5



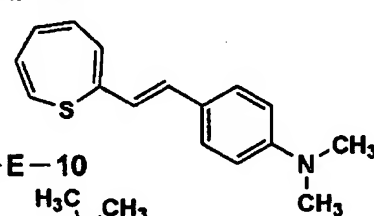
C7-E-6



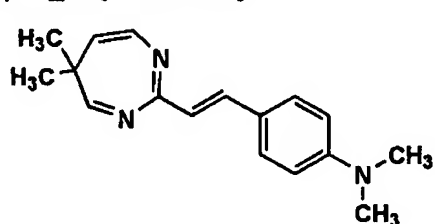
C7-E-7



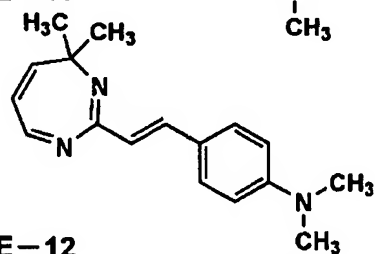
C7-E-8



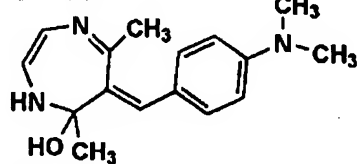
C7-E-9



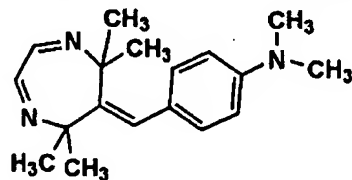
C7-E-10



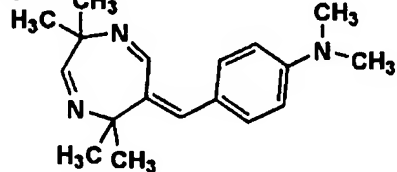
C7-E-11



C7-E-12



C7-E-13



[ 0 6 7 8 ]

[ 化 4 3 0 ]

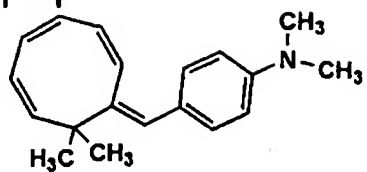
10

20

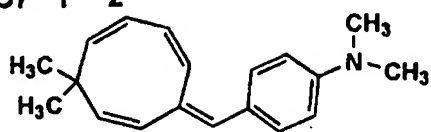
30

40

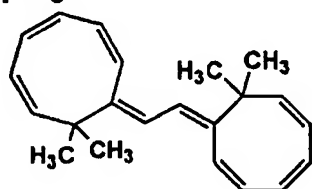
C7-F-1



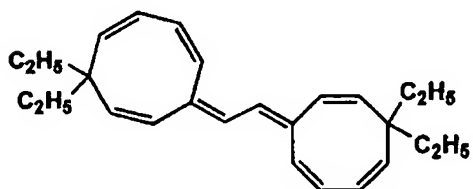
C7-F-2



C7-F-3

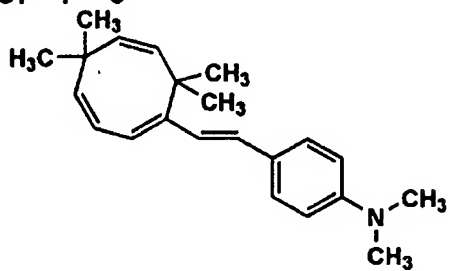


C7-F-4

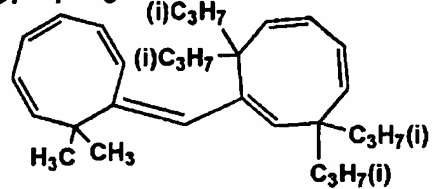


10

C7-F-5

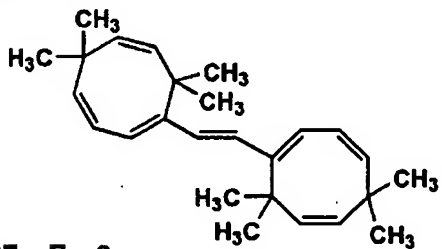


C7-F-6

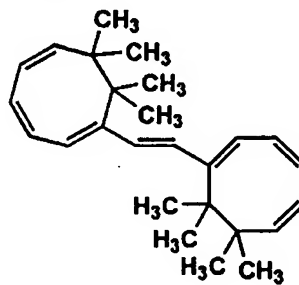


20

C7-F-7

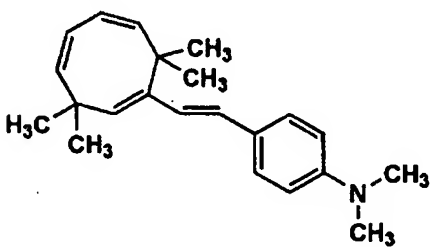


C7-F-8



30

C7-F-9

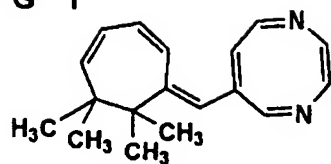


40

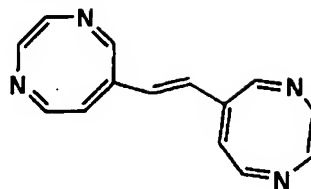
[ 0 6 7 9 ]

[ 化 4 3 1 ]

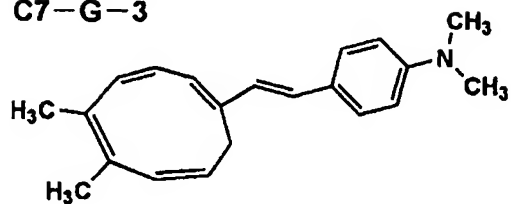
C7-G-1



C7-G-2

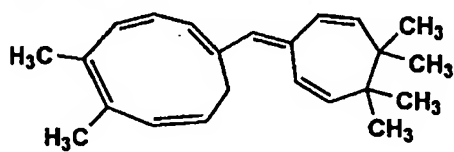


C7-G-3

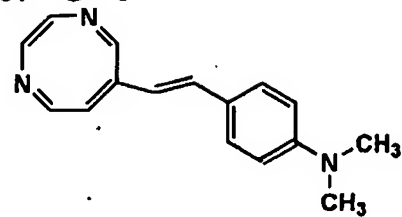


10

C7-G-4

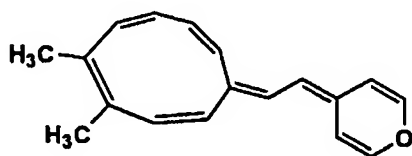


C7-G-5

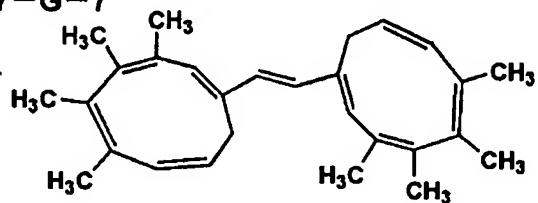


20

C7-G-6



C7-G-7

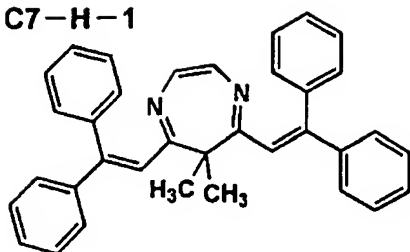


30

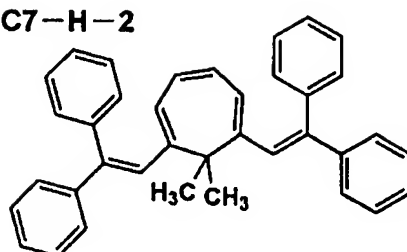
【 0 6 8 0 】

【 化 4 3 2 】

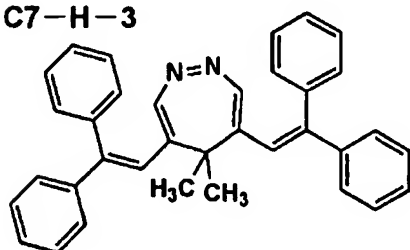
C7-H-1



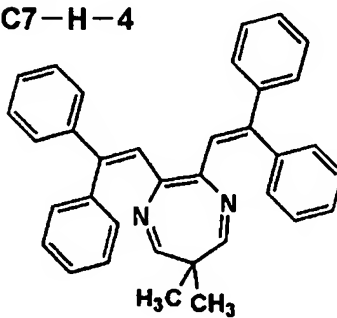
C7-H-2



C7-H-3

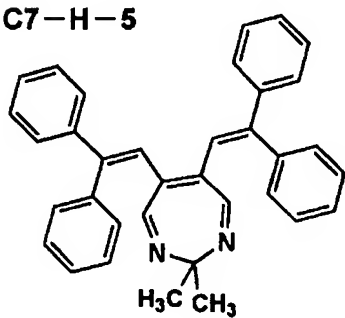


C7-H-4

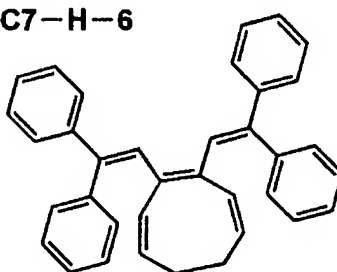


10

C7-H-5

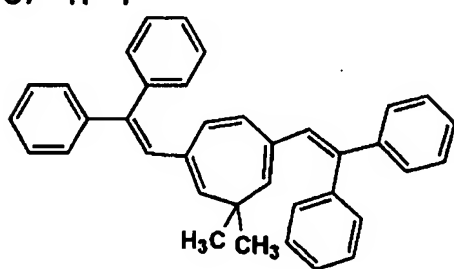


C7-H-6

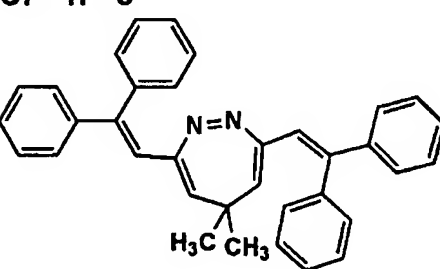


20

C7-H-7



C7-H-8



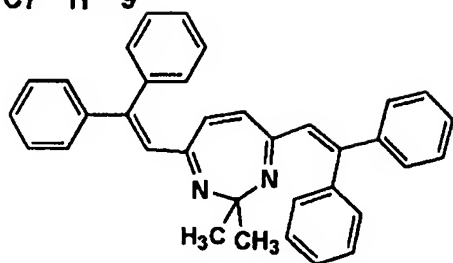
30

【 0 6 8 1 】

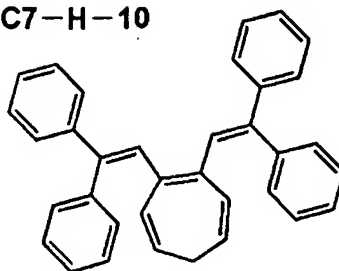
【 化 4 3 3 】

40

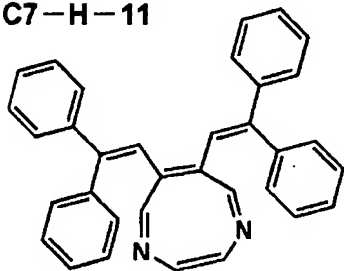
C7-H-9



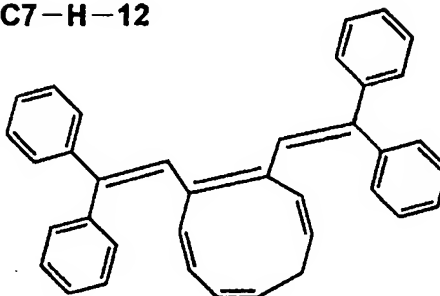
C7-H-10



C7-H-11



C7-H-12



10

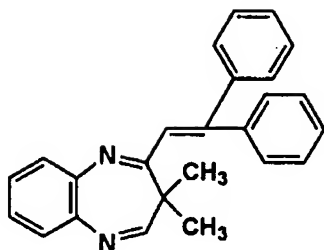
20

【 0 6 8 2 】

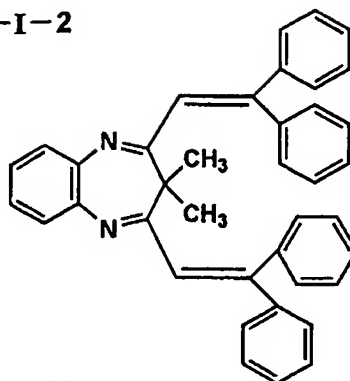
【 化 4 3 4 】



C7-I-1

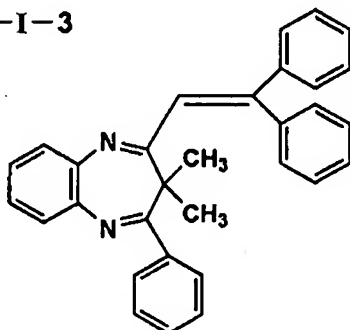


C7-I-2

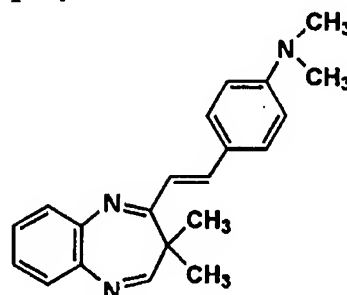


10

C7-I-3

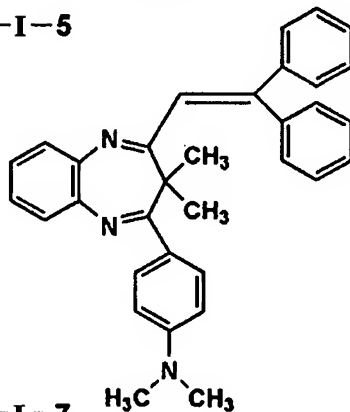


C7-I-4

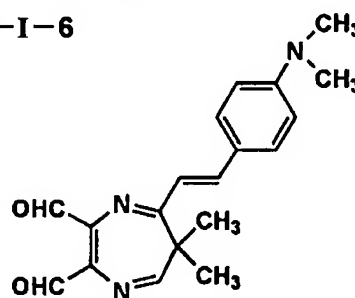


20

C7-I-5

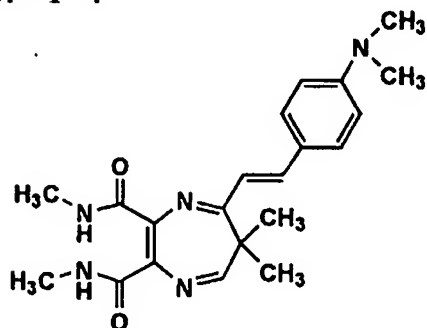


C7-I-6

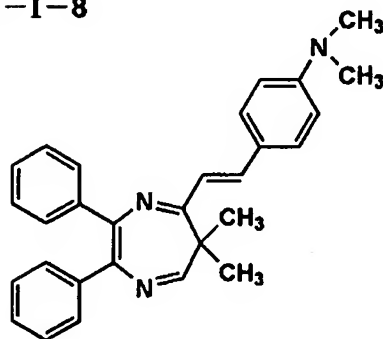


30

C7-I-7



C7-I-8



40

【0683】

本発明の化合物は、固体状態において強い蛍光を持つ化合物であり、電場発光性にも優れており、発光材料として有効に使用できる。

【0684】

以下に本発明の化合物の合成方法を示す。

【0685】

50

〈合成方法〉

1-ホルミル-1, 3, 5-シクロヘプタトリエン(1-1)を文献記載の方法(Bull. Chem. Soc. Jpn. の第66巻1号275ページ(1993年))で合成した。

【0686】

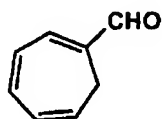
ジメチル-p-トリルアミンを従来公知の方法でWittig試薬(1-2)とした。次に、(1-1) 0.5gと(1-2) 2gを窒素気流下でドライTHF 10.0ml中に溶解し、攪拌しながらカリウム-t-ブトキシド 0.5gを加えた。室温で4時間攪拌した後、一晩放置した。得られた混合物に酢酸エチルと水を加え、有機層を抽出した。硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒を留去した。カラム精製を行い、本発明の化合物(C7-A-1) 0.5gを得た(収率45%)。

10

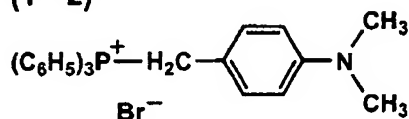
【0687】

【化435】

(1-1)



(1-2)



20

【0688】

〈合成方法〉

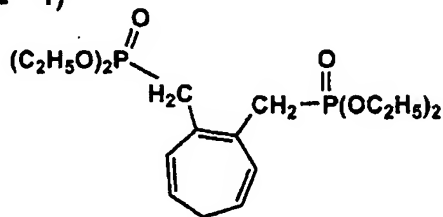
(2-1) 5.0gとベンゾフェノン 4.6gを、ジメチルスルホキシド 100mlに溶解し、これにカリウム-t-ブトキシド 2.8gを加え、窒素気流下、室温で4時間攪拌した後、一晩放置した。得られた混合物にメタノール 100mlを加え、析出した結晶を濾過した。濾過生成物を水 100mlで3回、続いてメタノール 100mlで3回洗浄し、カラム精製を行い、本発明の化合物(C7-H-10)を3.0gを得た(収率30%)。

30

【0689】

【化436】

(2-1)



40

【0690】

上記の化合物は、NMRスペクトルとマスマスペクトルで確認を行った。

【0691】

本発明においてホスト化合物等に用いられる別の蛍光性化合物としては、分子内にホウ素原子を含有している化合物であり、好ましくは、前記一般式(C8-1)で表される化合物である。一般式(C8-1)において、Bはホウ素原子を表し、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>およびR<sub>13</sub>は一価の置換基を表す。但し、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>およびR<sub>13</sub>の少なくとも1つは芳香族基を表す。R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>、R<sub>13</sub>で表される一価の置換基としては、アルキル基(

50

メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アリール基(フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等)、アルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(フェノキシ基等)、アルキルチオ基(メチルチオ基、エチルチオ基、i-プロピルチオ基等)、アリールチオ基(フェニルチオ基等)、ハロゲン原子(フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基(ピロリル基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)等が挙げられる。芳香族基としては上記アリール基およびヘテロアリール基(ピロリル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル等)が挙げられる。好ましくは、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$  および  $R_{13}$  がすべて芳香族基である時である。

#### 【0692】

次に一般式(C8-2)について説明する。一般式(C8-2)においてBはホウ素原子を表し、 $Ar_{21}$  および  $Ar_{22}$  は芳香族基を表し、Aは2~15個の基を表し、nは2~15を表す。 $Ar_{21}$  および  $Ar_{22}$  で表される芳香族基は一般式(C8-1)と同様のものが挙げられる。また、Aで表される2~15個の基とは、好ましくは、単環基、縮合多環基、または、単環もしくは縮合多環を含む芳香族単位が連結した基である、また、これらの環は炭素、酸素、窒素、イオウ原子からなる原子で連結された2~15個の基でも良い。

#### 【0693】

Aの具体例としては、ベンゼン、トルエン、ナフタレン、アントラセン、フェナントレン、フルオレン、ピレン、ペリレン、トリフェニレン、アズレン、フルオレノン、フラン、チオフエン、ピロール、ピリジン、オキサゾール、ピラジン、ピリミジン、オキサジアゾール、トリアゾール、インドール、キノリン、イソキノリン、カルバゾール、アクリジン、ベンゾチアゾール、フェナントロリン、キナクリドン等の置換もしくは未置換の芳香族環もしくは縮合芳香環の残基、さらには、ビフェニル、ターフェニル、ビナフチル、トリフェニルベンゼン、ジフェニルアントラセン、ルブレン、ビピリジン、ビキノリン、ビチオフエン、などの芳香環構造単位同士が直接連結した残基、スチルベン、ジフェニルメタン、ジフェニルエーテル、ベンゾフェノン、ジフェニルスルフィド、トリフェニルアミン等の芳香環構造単位同士が、非芳香環構造単位を介して連結した骨格を有する化合物の残基である。

#### 【0694】

次に、一般式(C8-3)について説明する。一般式(C8-3)において、Bはホウ素原子を表し、 $Ar_{31}$  は単環の芳香族環を表し、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{33}$  および  $R_{34}$  は一価の置換基を表す。nは1~5を表す。 $Ar_{31}$  で表される単環の芳香族基の具体例としてはベンゼン、フラン、チオフエン、ピロール、オキサゾール、イミダゾール、チアゾール、トリアゾール、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン等が挙げられる。また、これらの単環の芳香族基は更に置換されていてもよい。 $R_{41}$ 、 $R_{42}$ 、 $R_{43}$  および  $R_{44}$  で表される一価の置換基としては一般式(C8-1)と同様のものが挙げられる。

#### 【0695】

一般式(C8-3)の化合物は、好ましくは一般式(C8-4)で表され、 $Ar_{41}$ 、 $Ar_{42}$ 、 $Ar_{43}$  および  $Ar_{44}$  で表される芳香族基は、一般式(C8-2)の $Ar_{21}$ と同様のものが挙げられ、 $R_{45}$ が一価の置換基の場合の例としては、一般式(C8-1)で例示した置換基と同様のものが挙げられる。

#### 【0696】

次に、一般式(C8-5)について説明する。Bはホウ素原子を表し、Cは炭素原子を表し、 $A_{51}$ 、 $A_{52}$ 、 $A_{53}$ 、 $A_{54}$ 、 $A_{55}$  および  $A_{56}$  は炭素原子または窒素原子を表し、 $Z_{51}$ 、 $Z_{52}$  および  $Z_{53}$  は芳香族環を形成するのに必要な原子群を表し、 $R_5$

$R_{51}$ 、 $R_{52}$ 、 $R_{53}$ 、 $R_{54}$ 、 $R_{55}$  および  $R_{56}$  はそれぞれ独立に水素原子または一価の置換基を表し、 $R_{51} \sim R_{56}$  のうち、少なくとも4つは置換基を表す。 $R_{57}$ 、 $R_{58}$  および  $R_{59}$  はそれぞれ独立に水素原子または一価の置換基を表し、 $l3$ 、 $n3$  および  $m3$  はそれぞれ独立に0～7を表す。 $Z_{51}$ 、 $Z_{52}$  および  $Z_{53}$  で形成される芳香族環とは、一般式(C8-2)のAで例示した芳香族環もしくは縮合芳香環が挙げられる。また、 $R_{51} \sim R_{59}$  で表される一価の置換基の例としては、一般式(C8-1)で例示した置換基と同様のものが挙げられる。

【0697】

好ましくは、 $R_{51} \sim R_{56}$  が全て一価の置換基である時であり、より好ましくは、 $R_{51} \sim R_{56}$  がそれぞれ独立にアルキル基、アルコキシ基、アリーロキシ基またはハロゲン原子である時である。

10

【0698】

次に一般式(C8-6)について説明する。 $Ar_{61}$ 、 $Ar_{62}$ 、 $Ar_{63}$  および  $Ar_{64}$  は各々独立に置換又は無置換の芳香族基を表し、 $Q_{61}$  は芳香族基を表し、 $n4$  は1～5を表す。 $Ar_{61}$ 、 $Ar_{62}$ 、 $Ar_{63}$  および  $Ar_{64}$  で表される芳香族基は、一般式(C8-2)の $Ar_{21}$  と同様のものが挙げられ、 $Q_{61}$  で表される芳香族基は、一般式(C8-3)の $Ar_{31}$  と同様のものが挙げられる。

【0699】

また、ホスト化合物の分子量は600～2000であることが好ましい。分子量が600～2000であると、 $T_g$  (ガラス転移温度)が上昇し、熱安定性が向上し、素子寿命が改善される。より好ましくは分子量が800～2000である。

20

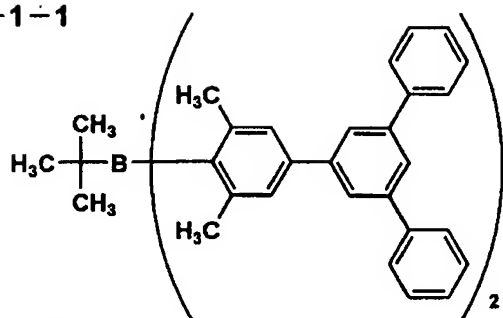
【0700】

以下に、具体的化合物例を示すが、これらに限定されるものではない。

【0701】

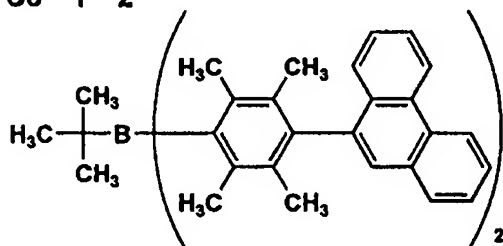
【化437】

C8-1-1

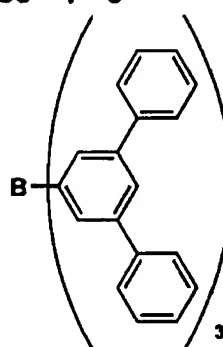


10

C8-1-2

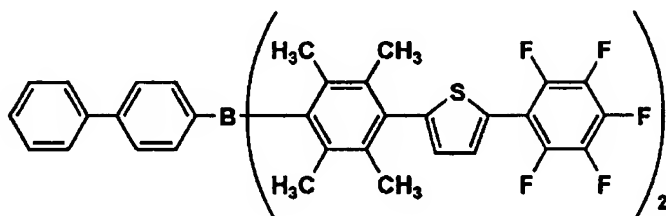


C8-1-3



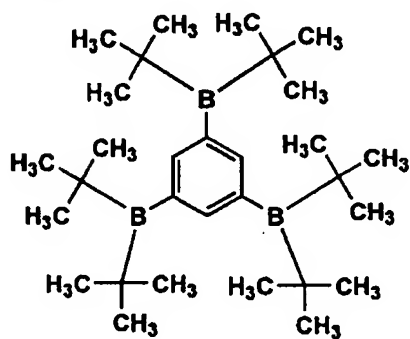
20

C8-1-4



30

C8-1-5

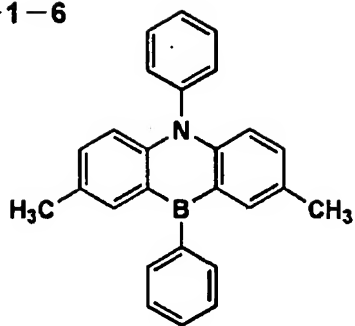


40

【 0 7 0 2 】

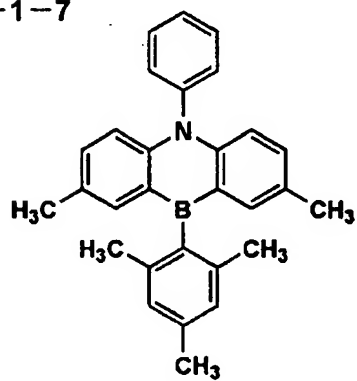
【 化 4 3 8 】

C8-1-6



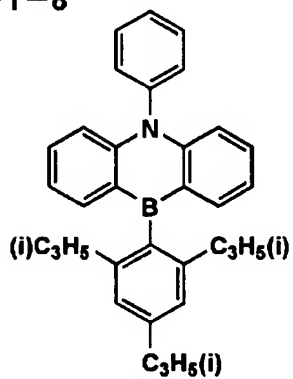
10

C8-1-7



20

C8-1-8

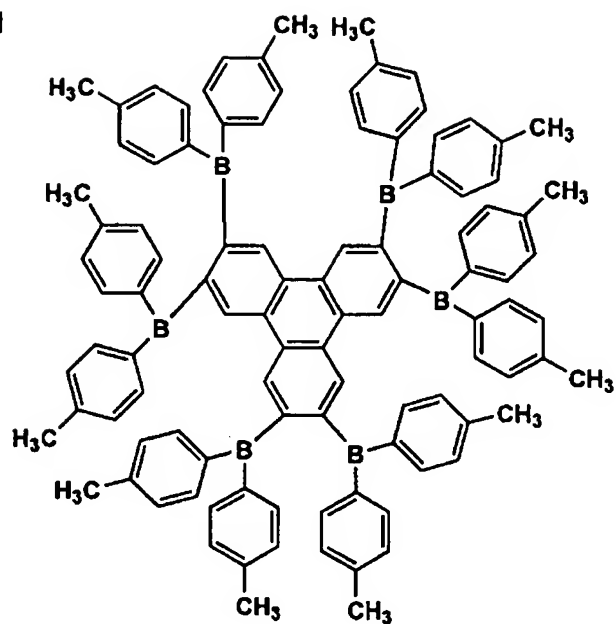


30

【 0 7 0 3 】

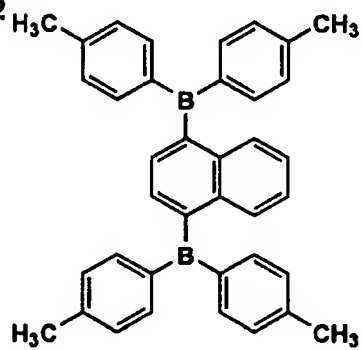
【 化 4 3 9 】

C8-2-1



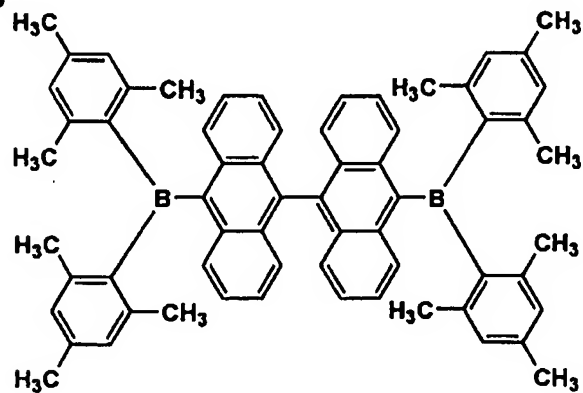
10

C8-2-2



20

C8-2-3



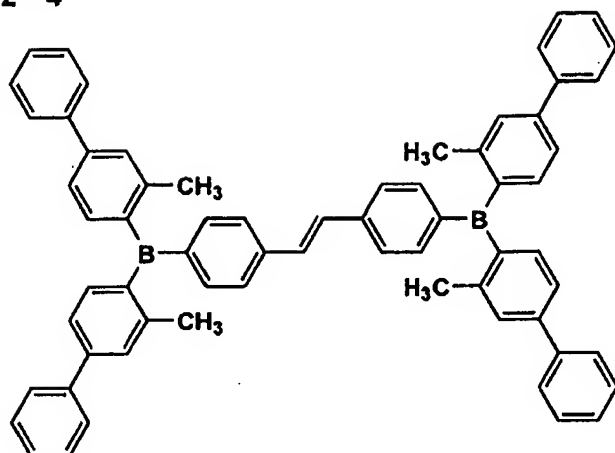
30

40

【 0 7 0 4 】

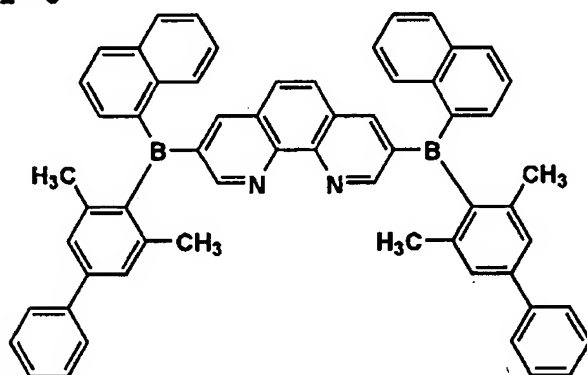
【 化 4 4 0 】

C8-2-4



10

C8-2-5



20

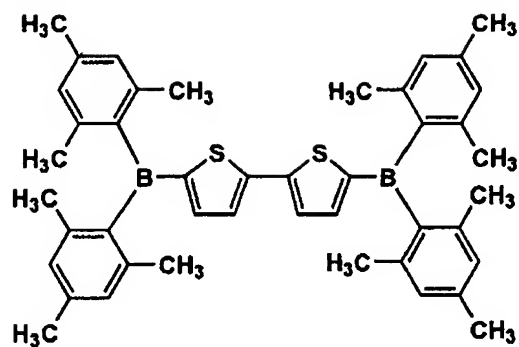
【 0 7 0 5 】

【 化 4 4 1 】

30

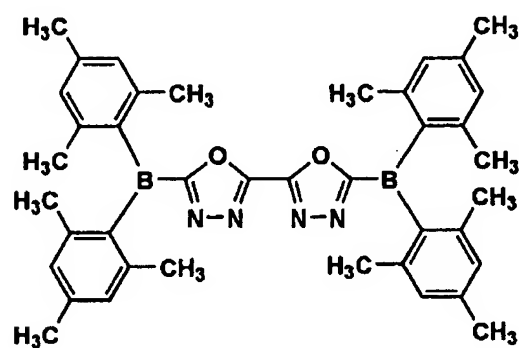


C8-3-1



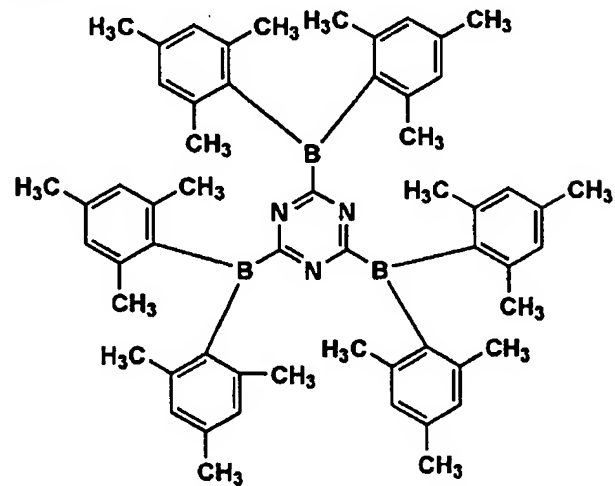
10

C8-3-2



20

C8-3-3



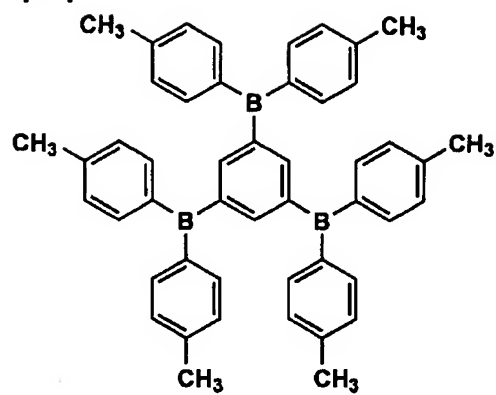
30

40

【 0 7 0 6 】

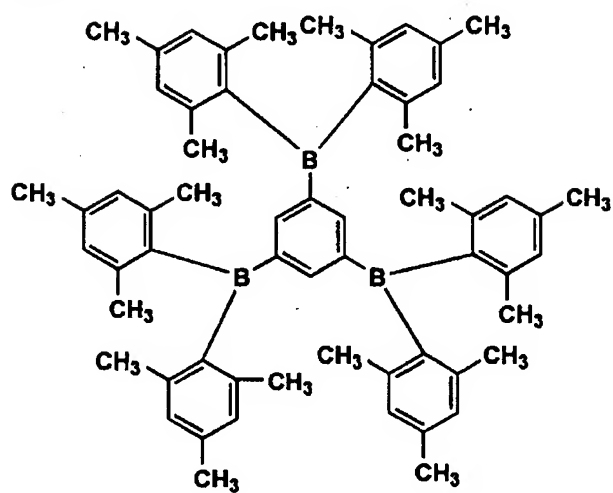
【 化 4 4 2 】

C8-4-1



10

C8-4-2



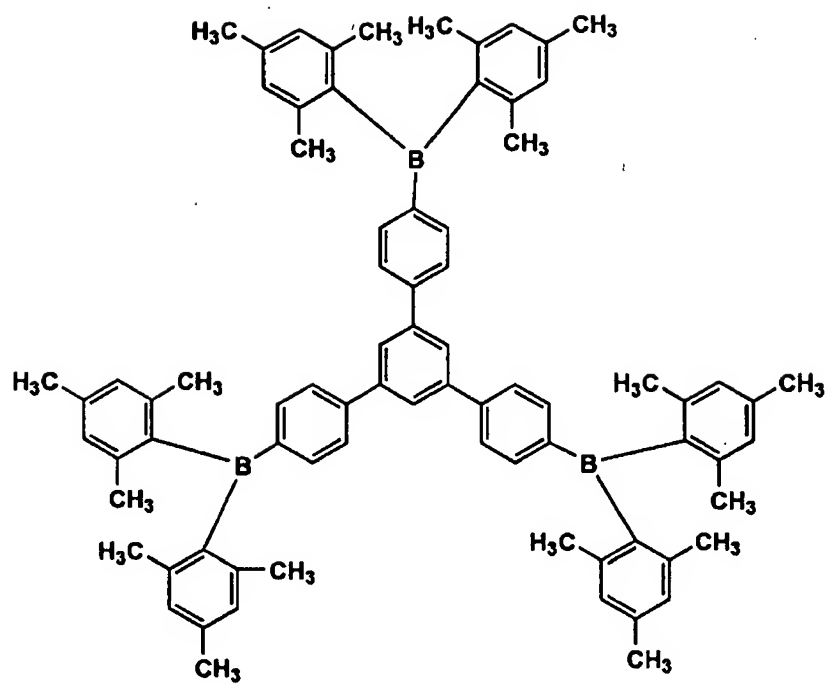
20

30

【 0 7 0 7 】

【 化 4 4 3 】

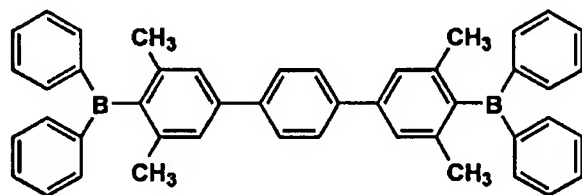
## C8-4-3



10

20

## C8-4-4

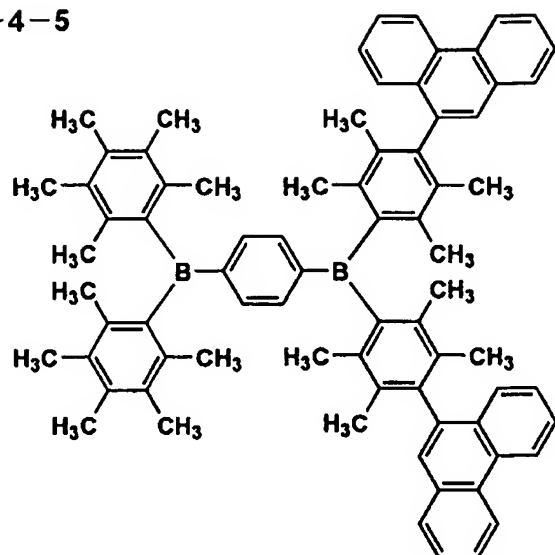


30

【 0 7 0 8 】

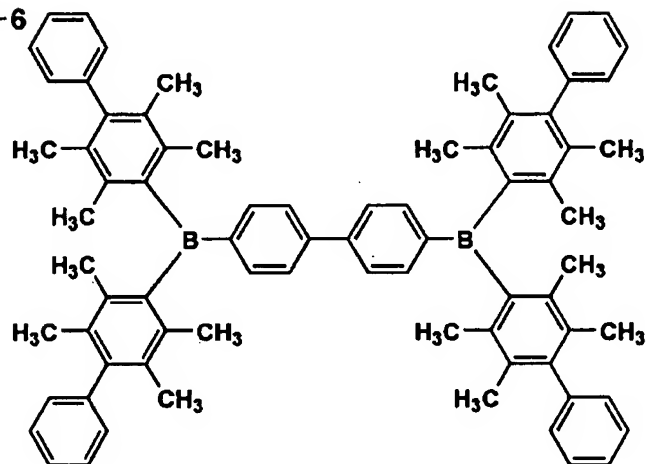
【 化 4 4 4 】

C8-4-5



10

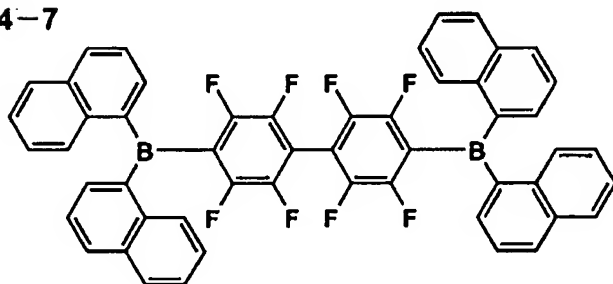
C8-4-6



20

30

C8-4-7

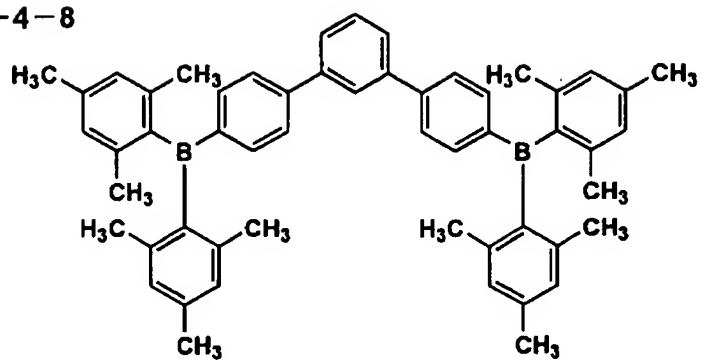


40

【 0 7 0 9 】

【 化 4 4 5 】

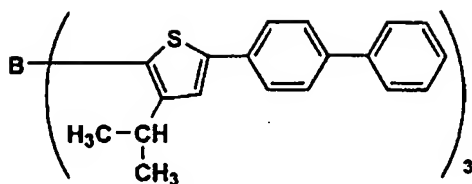
C8-4-8



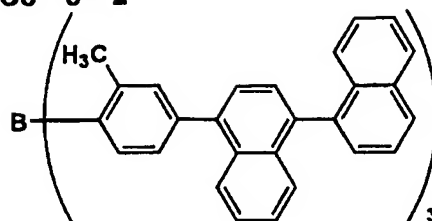
【 0 7 1 0 】

【 化 4 4 6 】

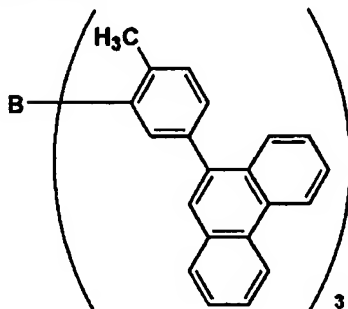
C8-5-1



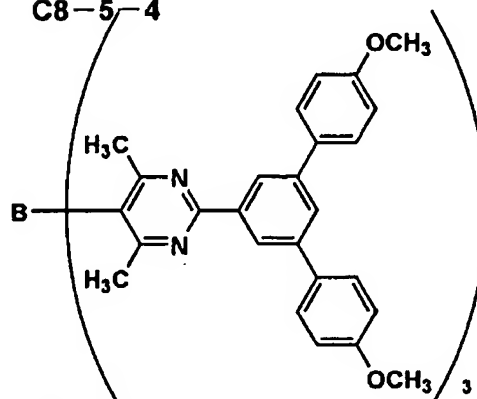
C8-5-2



C8-5-3

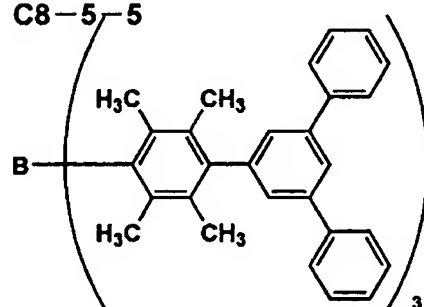


C8-5-4



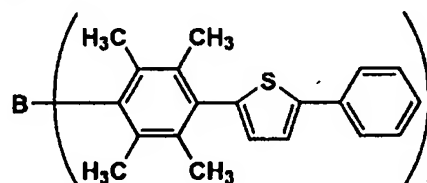
10

C8-5-5



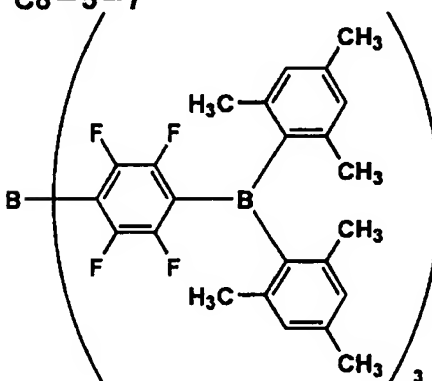
20

C8-5-6

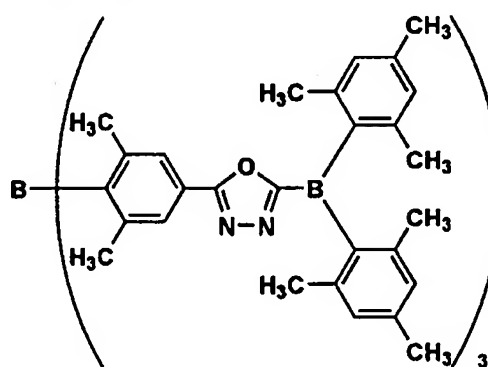


30

C8-5-7

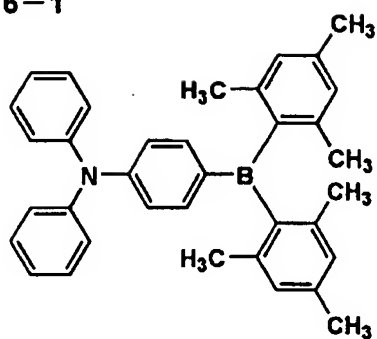


C8-5-8

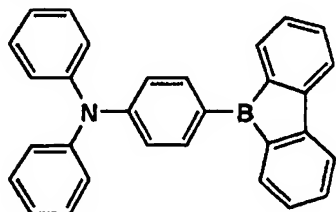


40

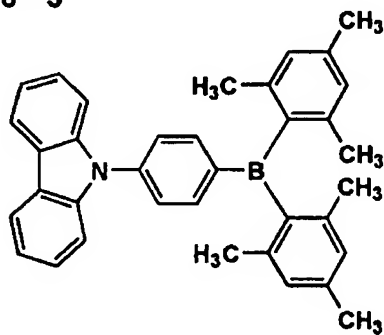
[ 0 7 1 1 ]  
[ 化 4 4 7 ]

**C8-6-1**

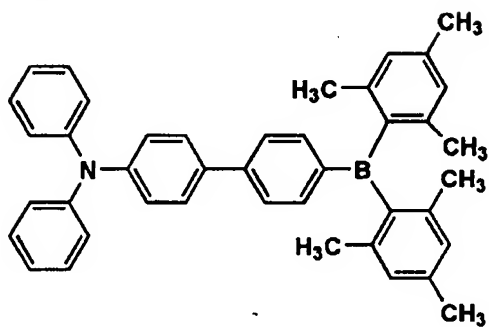
10

**C8-6-2**

20

**C8-6-3**

30

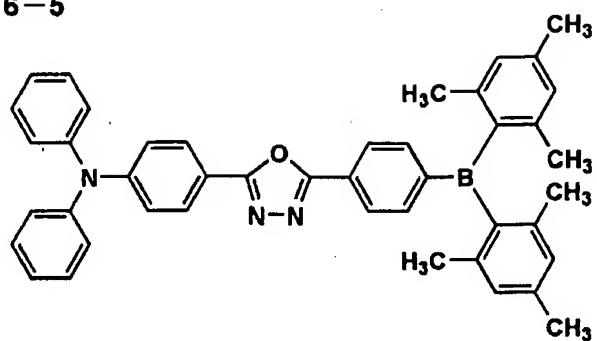
**C8-6-4**

40

【 0 7 1 2 】

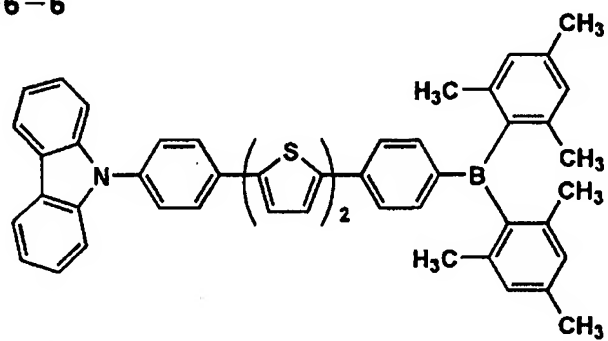
【 化 4 4 8 】

C8-6-5



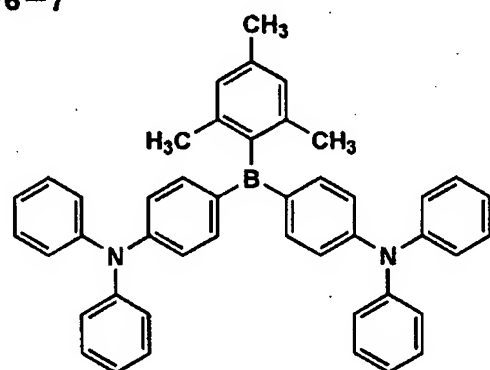
10

C8-6-6



20

C8-6-7



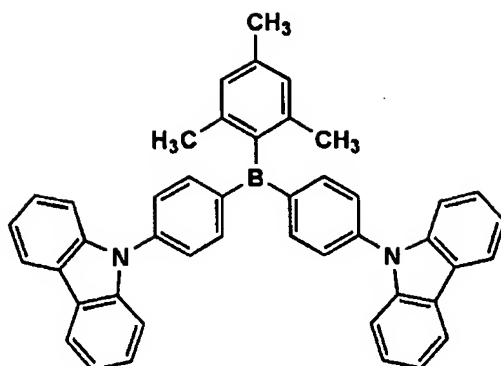
30

【 0 7 1 3 】

【 化 4 4 9 】

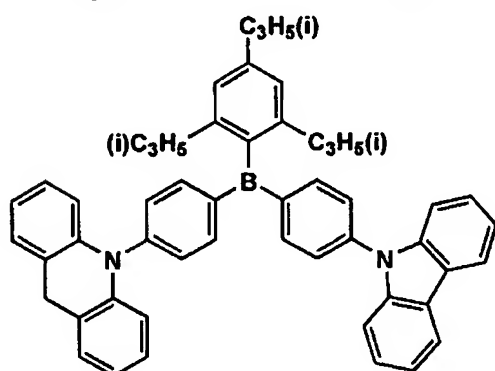


C8-6-8



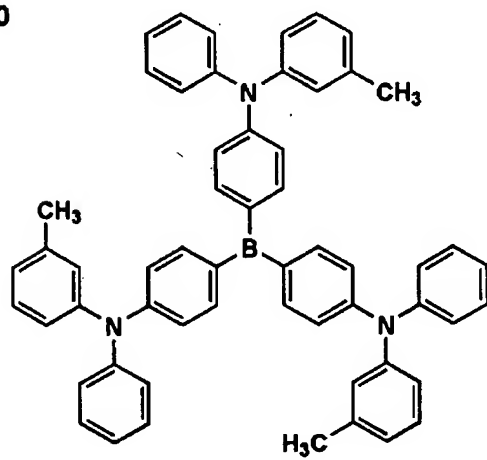
10

C8-6-9



20

C8-6-10

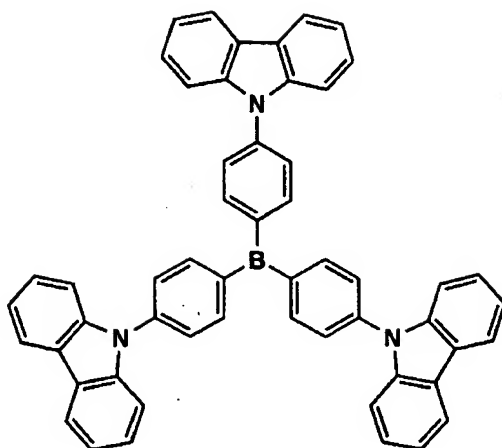


30

【 0 7 1 4 】

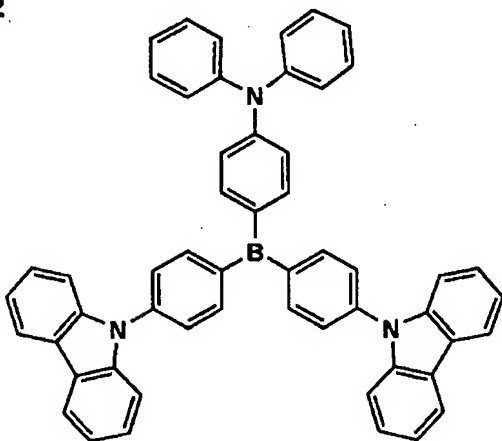
【 化 4 5 0 】

C8-6-11



10

C8-6-12



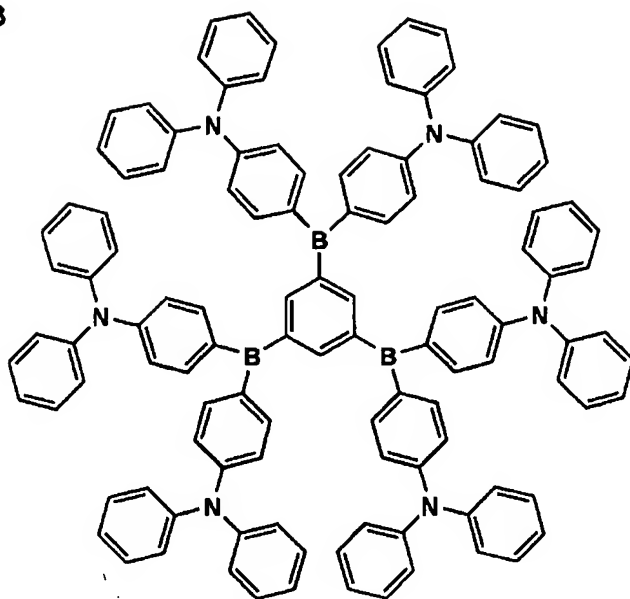
20

【0715】

【化451】

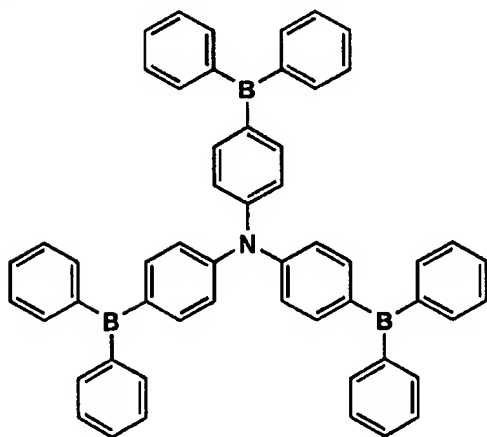
30

C8-6-13



10

C8-6-14



20

30

## 【0716】

これらの化合物は公知の方法によって製造が可能であるが、例えば特開2001-93670等に記載された方法を用いることができる。

## 【0717】

本発明者等は、また、燐光性のドーパント化合物を含有する発光層と陰極間に形成される少なくとも1層を構成する蛍光性化合物について鋭意検討を重ねた結果、その蛍光極大波長、分子量、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比 ( $F/(H+F)$ ) が特定の値をとる場合に、発光輝度及び寿命の向上が得られることを見出した。具体的には、蛍光極大波長が415nm以下で、分子量が500~2000で、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比が0~0.9である有機エレクトロルミネッセンス素子は発光輝度が高く寿命が長いことを見出した。

40

## 【0718】

また、本発明の効果をより発現するためには、上記化合物の蛍光極大波長は405nm以下が好ましく、分子量は700~2000が好ましく、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比は0.1~0.7が好ましい。さらに、発光層のホスト化合物の蛍光極大波長は415nm以下が好ましく、405nm以下がより好ましい。発光層

50

と陽極間に形成される少なくとも1層を構成する化合物の蛍光極大波長は415nm以下が好ましい。

【0719】

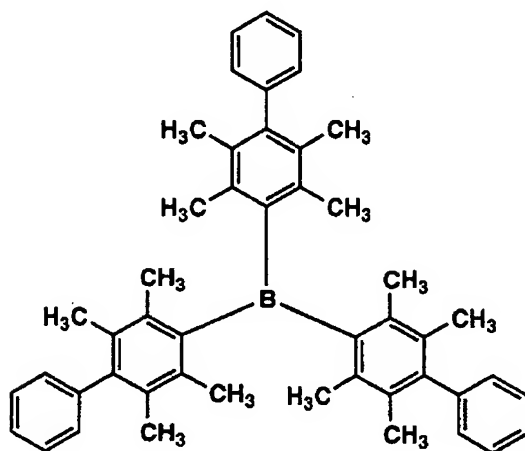
本発明においては、陰極と発光層間に少なくとも1層の電子輸送層が形成され、該電子輸送層に用いられる電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる）が、蛍光極大波長が415nm以下で、分子量が500～2000で、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比（ $F/(H+F)$ ）が0～0.9である電子輸送材料（以下、本発明における電子輸送材料ということがある）である。該電子輸送材料が、複数である場合、陰極側の発光層表面に隣接する電子輸送層が本発明における電子輸送材料から構成されることが好ましい。該電子輸送材料の例を以下に挙げるが、本発明はこれに限定されるものではない。

10

【0720】

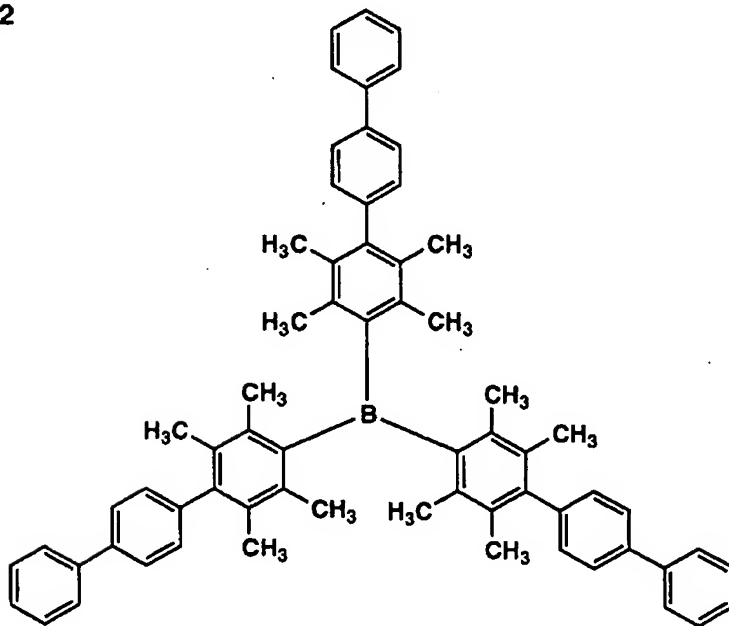
【化452】

1



20

2



30

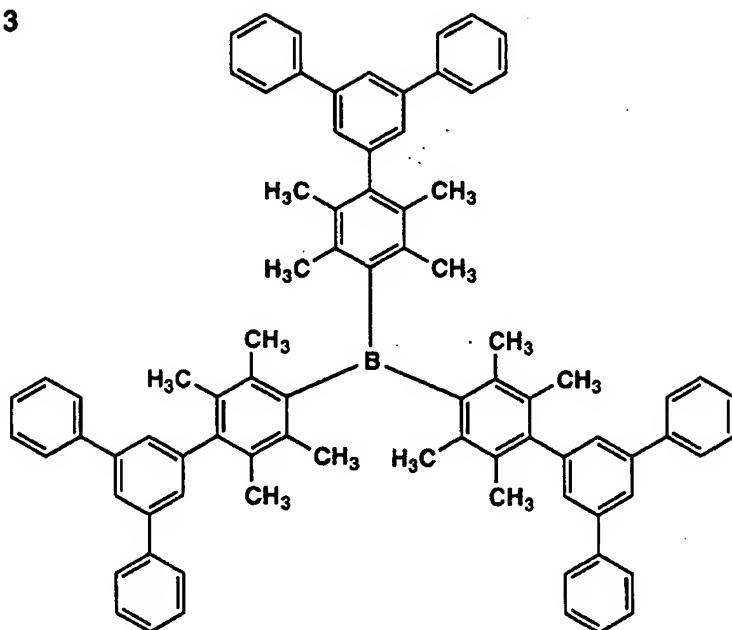
40

【0721】

50

【化 4 5 3】

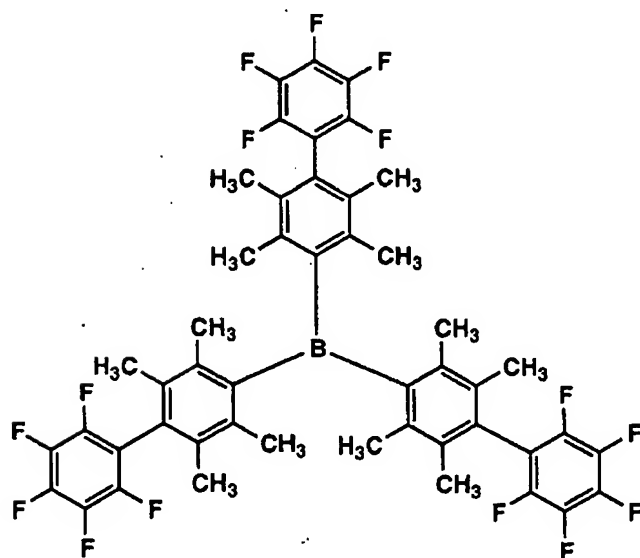
3



10

20

4

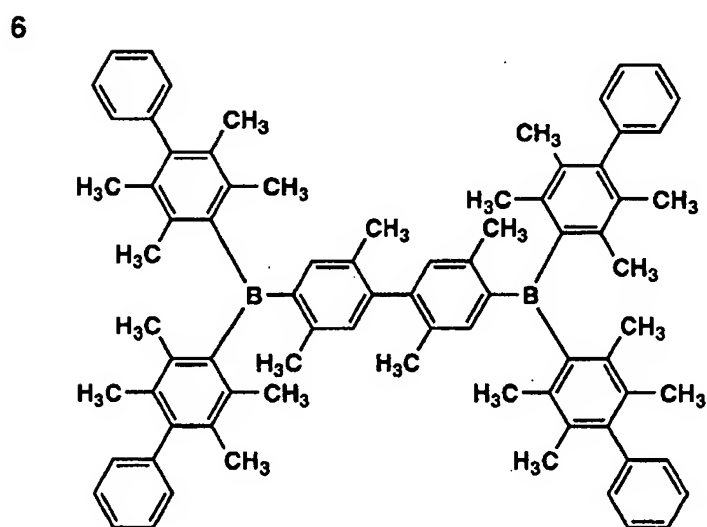
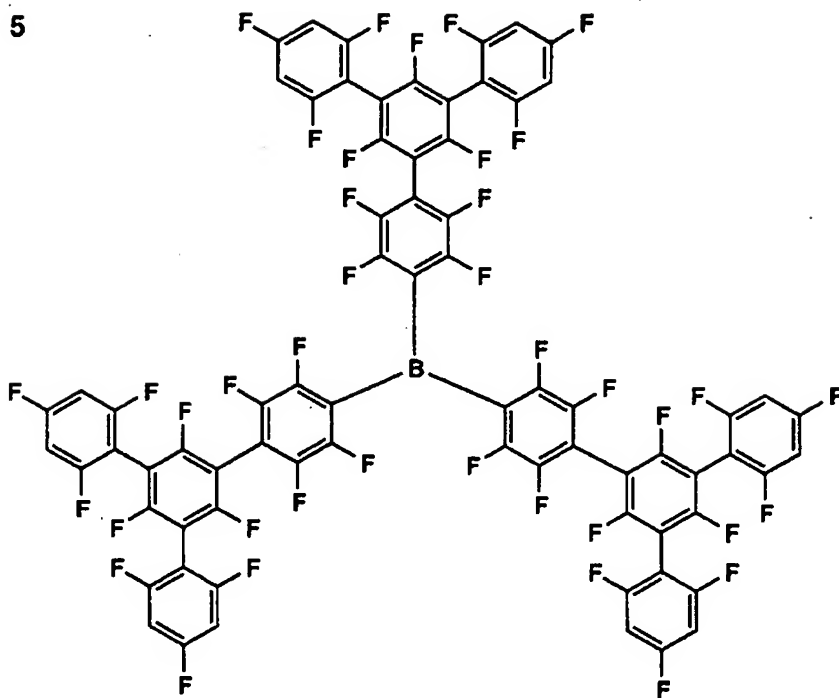


30

【 0 7 2 2 】

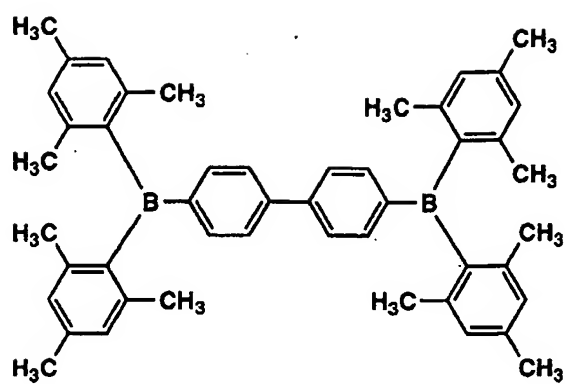
【化 4 5 4】

40



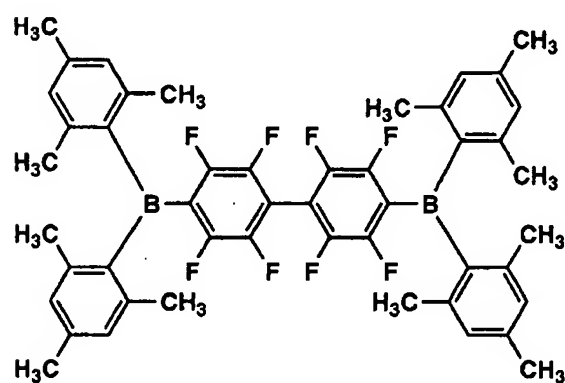
[ 0 7 2 3 ]  
[ 化 4 5 5 ]

7



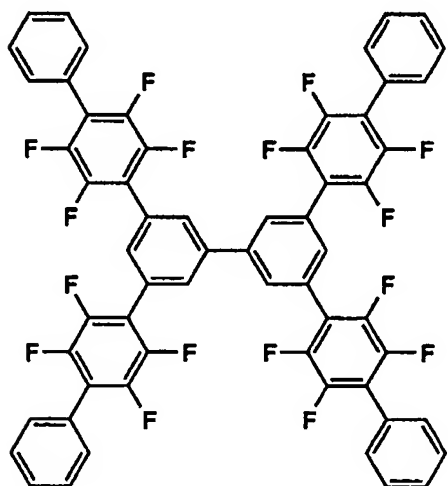
10

8



20

9



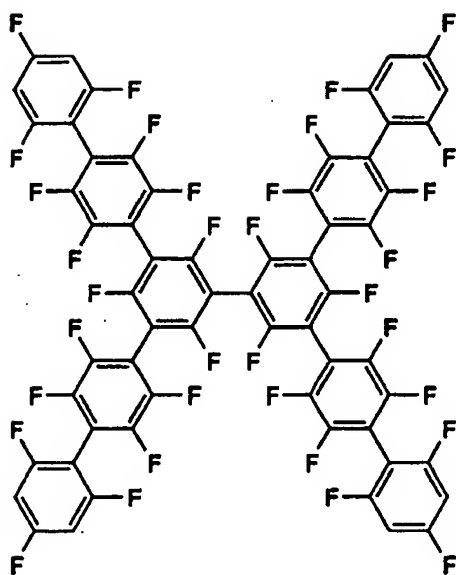
30

40

【 0 7 2 4 】

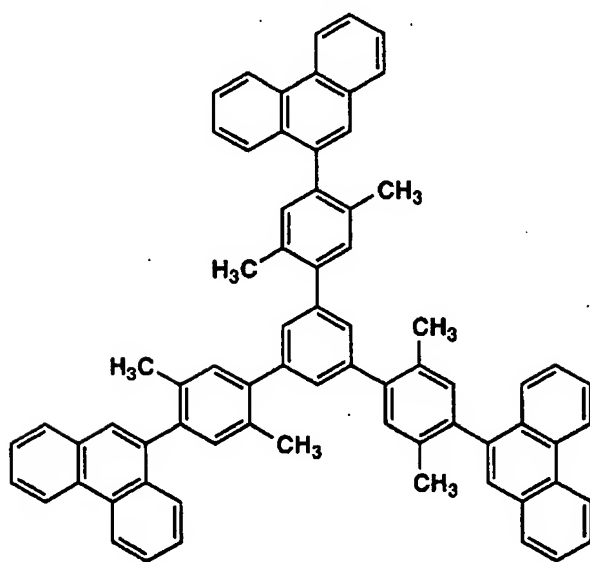
【 化 4 5 6 】

10



10

11



20

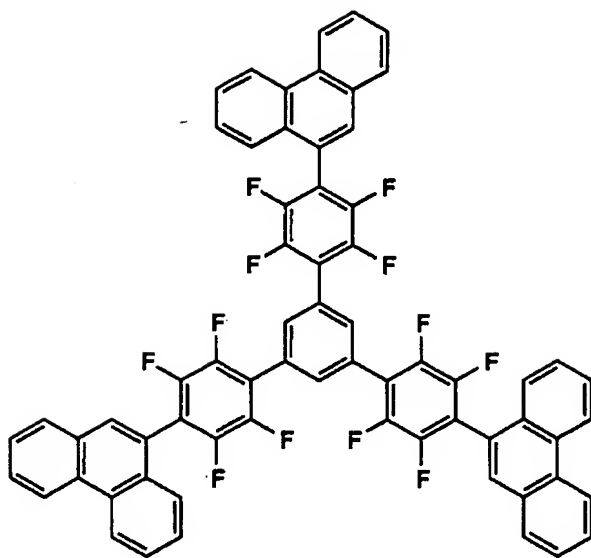
30

[ 0 7 2 5 ]  
[ 化 4 5 7 ]

40

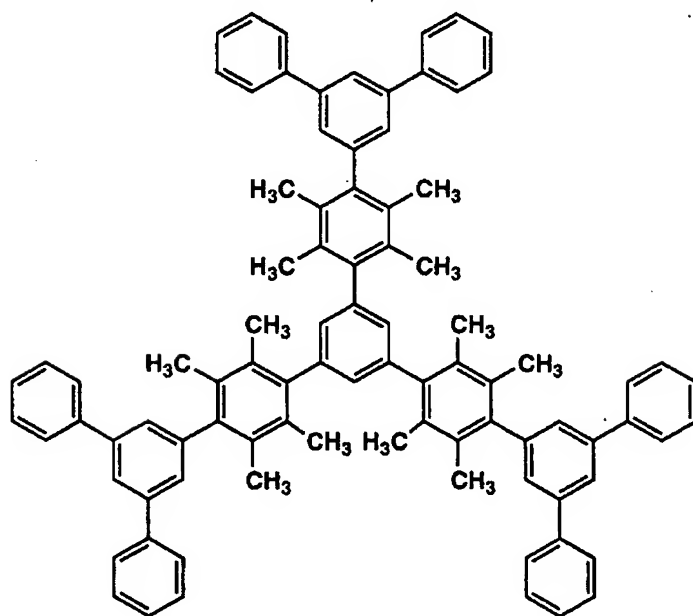


12



10

13



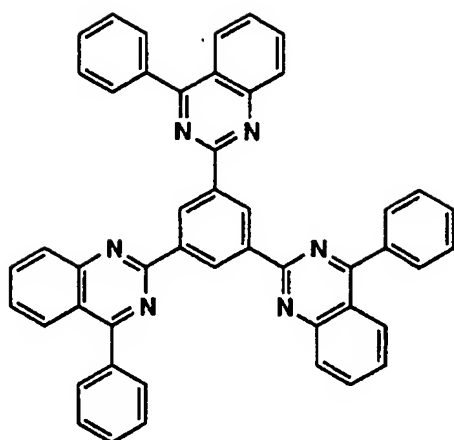
20

30

[ 0 7 2 6 ]  
[ 化 4 5 8 ]

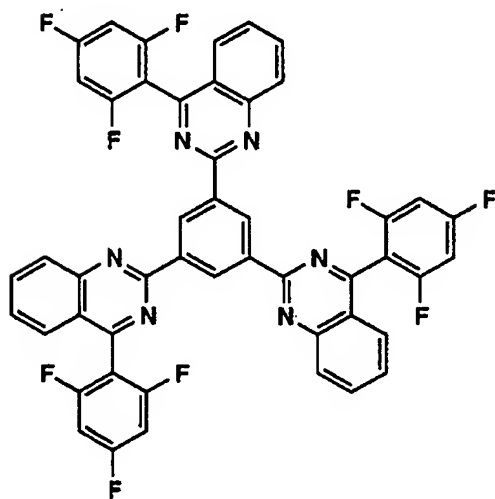
40

14



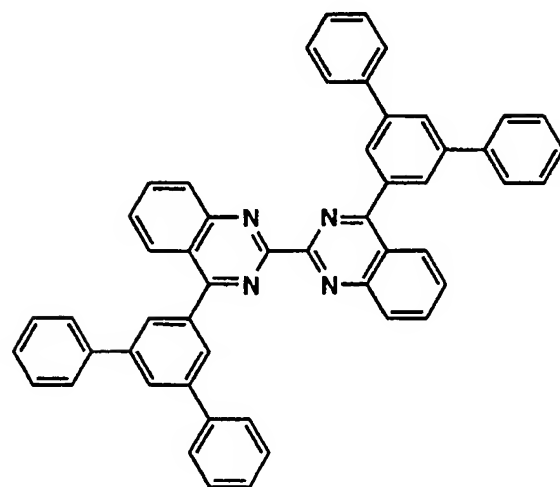
10

15



20

16



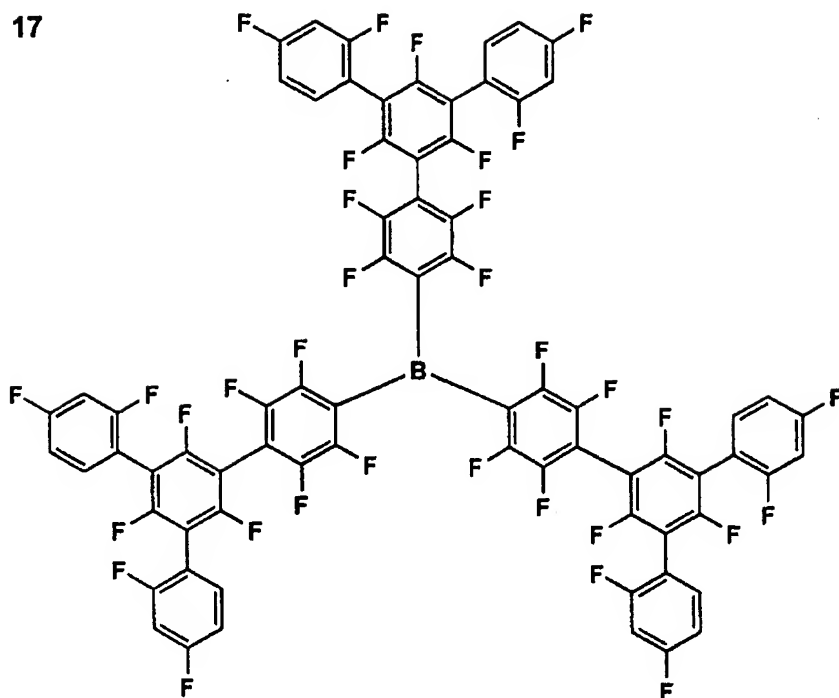
30

40

【 0 7 2 7 】

【 化 4 5 9 】

17



10

20

## 【0728】

本発明に係る一般式（C9-1）で表される化合物（Siとカルバゾール誘導体から構成される化合物）について説明する。

## 【0729】

一般式（C9-1）の式中、Rは水素または1価の置換基を表す。1価の置換基としては脂肪族炭化水素基、芳香族基、芳香族ヘテロ環基を表し、好ましくは脂肪族炭化水素基であり、より好ましくはアルキル基（メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アルケニル基（ビニル基、プロペニル基、スチリル基等）である。

30

## 【0730】

Lは2価の連結基を表し、炭素、ケイ素、窒素、ホウ素、酸素、硫黄、金属、金属イオン等で形成される連結基、縮合多環基、複素単環基または置換フェニル基である。好ましくは、炭素原子、窒素原子、ケイ素原子、ホウ素原子、酸素原子、硫黄原子、縮合多環基、複素単環基または置換フェニル基であり、さらに好ましくは、アルキル基（メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アルケニル基（ビニル基、プロペニル基、スチリル基等）、アルキニル基（エチニル基等）、アルキルオキシ基（メトキシ基、エトキシ基、i-プロポキシ基、ブトキシ基等）、アリールオキシ基（フェノキシ基等）、アルキルチオ基（メチルチオ基、エチルチオ基、i-プロピルチオ基等）、アリールチオ基（フェニルチオ基等）、アミノ基、アルキルアミノ基（ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等）、アリールアミノ基（アニリノ基、ジフェニルアミノ基等）、縮合多環基（ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ベンゾオキサゾール基、ベンゾチアゾール基、ベンゾイミダゾール基）、複素単環基（フリル基、チエニル基、ピロール基、ピリミジル基、ピラジン基、トリアジン基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等）及び置換フェニル基（トリル基、キシリル基、トリメ

40

50

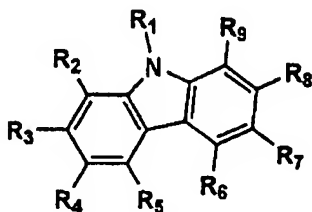
チルフェニル基、テトラメチルフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基)である。

【0731】

Aは、カルバゾール環の活性部位に置換基を有する下記カルバゾール誘導体残基を表す。

【0732】

【化460】



10

【0733】

式中、 $R_1 \sim R_9$ のうち1箇所がLと結合され、その残りの $R_1 \sim R_9$ は水素原子または一価の置換基を表し、カルバゾール環の活性部位 $R_4$ または $R_7$ の少なくとも1つがフェニル基以外の一価の置換基で置換されている。 $R_1 \sim R_9$ で表される一価の置換基としては、アルキル基(メチル基、エチル基、*i*-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、*t*-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、ベンジル基等)、アリール基(置換フェニル基(トリル基、キシリル基、トリメチルフェニル基、テトラメチルフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基)、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基等)、アルケニル基(ビニル基、プロペニル基、スチリル基等)、アルキニル基(エチニル基等)、アルキルオキシ基(メトキシ基、エトキシ基、*i*-プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(フェノキシ基等)、アルキルチオ基(メチルチオ基、エチルチオ基、*i*-プロピルチオ基等)、アリールチオ基(フェニルチオ基等)、アミノ基、アルキルアミノ基(ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等)、アリールアミノ基(アニリノ基、ジフェニルアミノ基等)、ハロゲン原子(フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等)、シアノ基、ニトロ基、複素環基(ピロール基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)、シリル基(トリメチルシリル基、*t*-ブチルジメチルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、トリフェニルシリル基等)等が挙げられる。それぞれの置換基はさらに置換基を有していてもよい。また、置換基同士が結合し、環を形成してもよい。

20

30

【0734】

本発明に係る一般式(C9-1)で表される化合物の分子量は350~3000の範囲であることが好ましい。一般に、高性能な有機EL素子を作製するには真空蒸着法が可能で、かつ均一なアモルファスガラスを形成する材料を用いることが好ましい。化合物の構造によっても異なるが、分子量が350未満ではガラス転移点が低く耐熱性に乏しい有機EL素子しか作製できず、またガラス状態の安定性に欠けるため結晶化しやすいことから安定な有機EL素子が作製できない。一方、分子量が3000を超えると真空蒸発による製膜ができない傾向があり、高性能な有機EL素子を作製する上では問題となる。

40

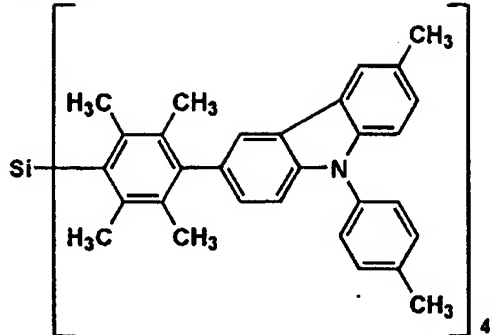
【0735】

以下に、具体的化合物例を示すが、本発明における化合物がこれらに限定されるものではない。

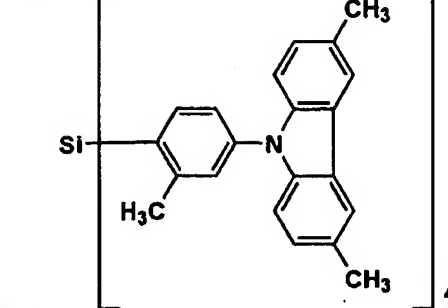
【0736】

【化461】

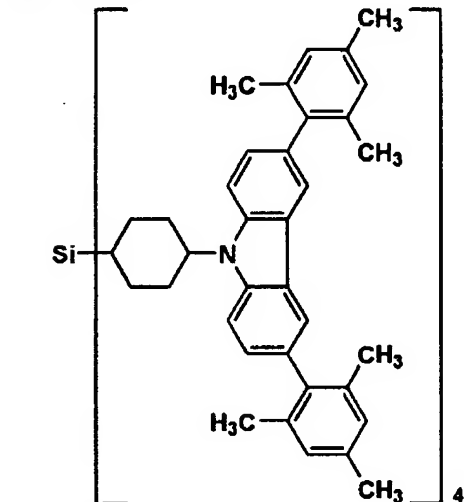
C9-A-1



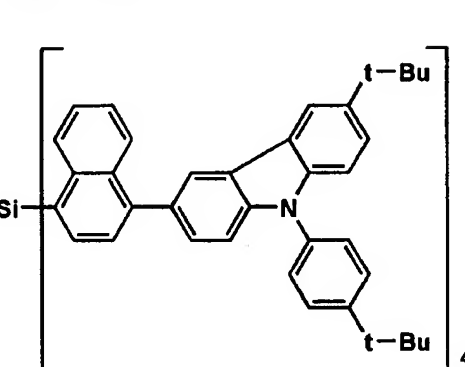
C9-A-2



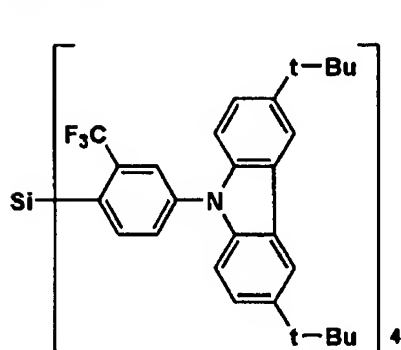
C9-A-3



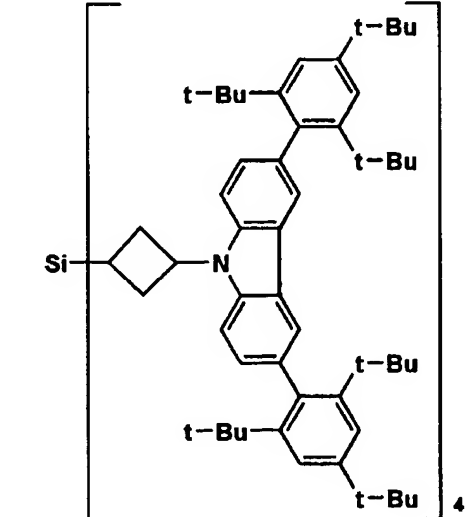
C9-A-4



C9-A-5



C9-A-6



【 0 7 3 7 】

【 化 4 6 2 】

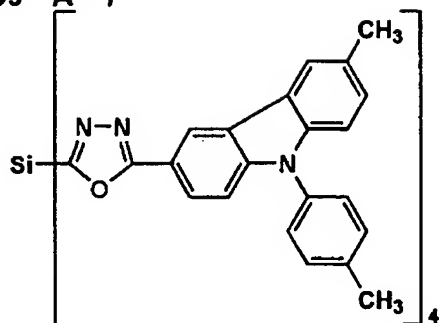
10

20

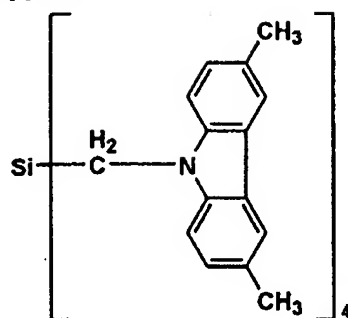
30

40

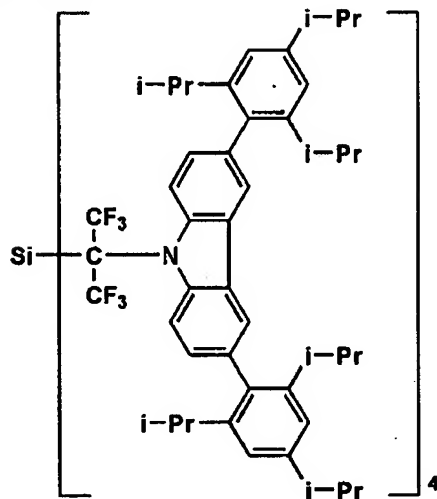
C9-A-7



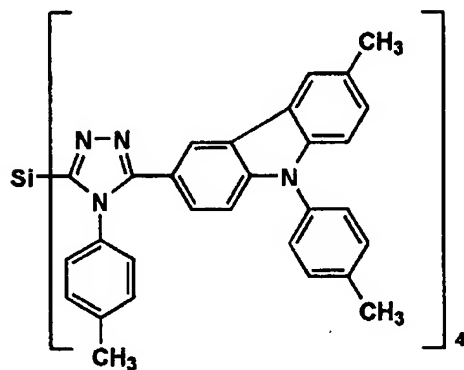
C9-A-8



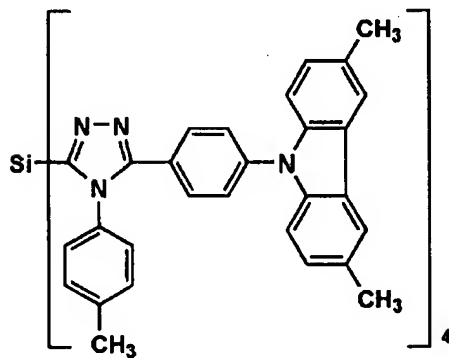
C9-A-9



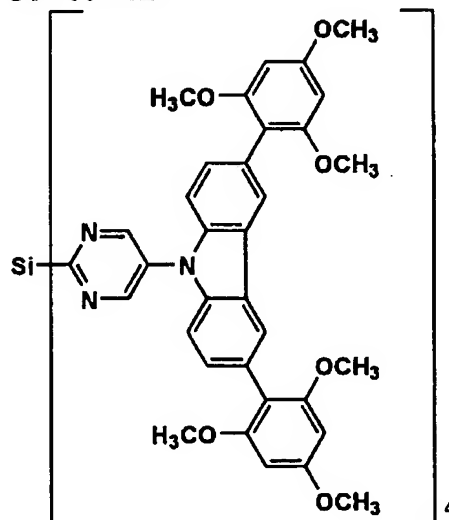
C9-A-10



C9-A-11



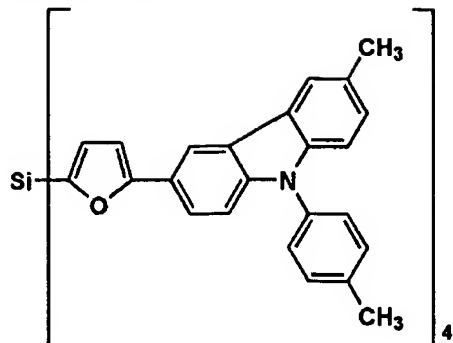
C9-A-12



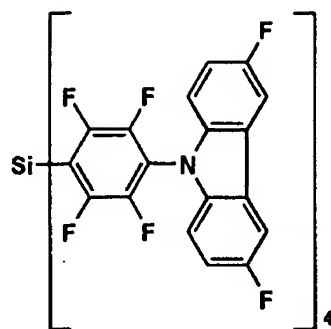
【 0 7 3 8 】

【 化 4 6 3 】

C9-A-13

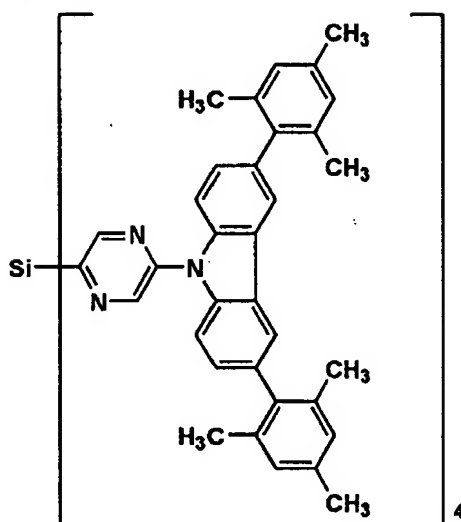


C9-A-14



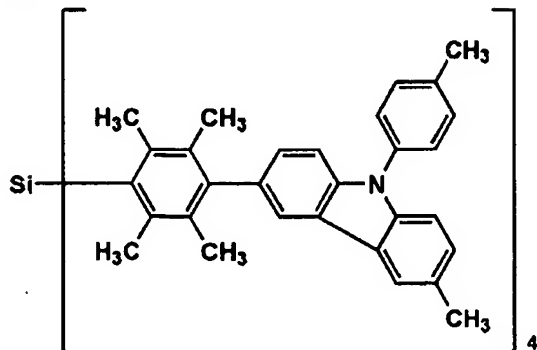
10

C9-A-15



20

C9-A-16



30

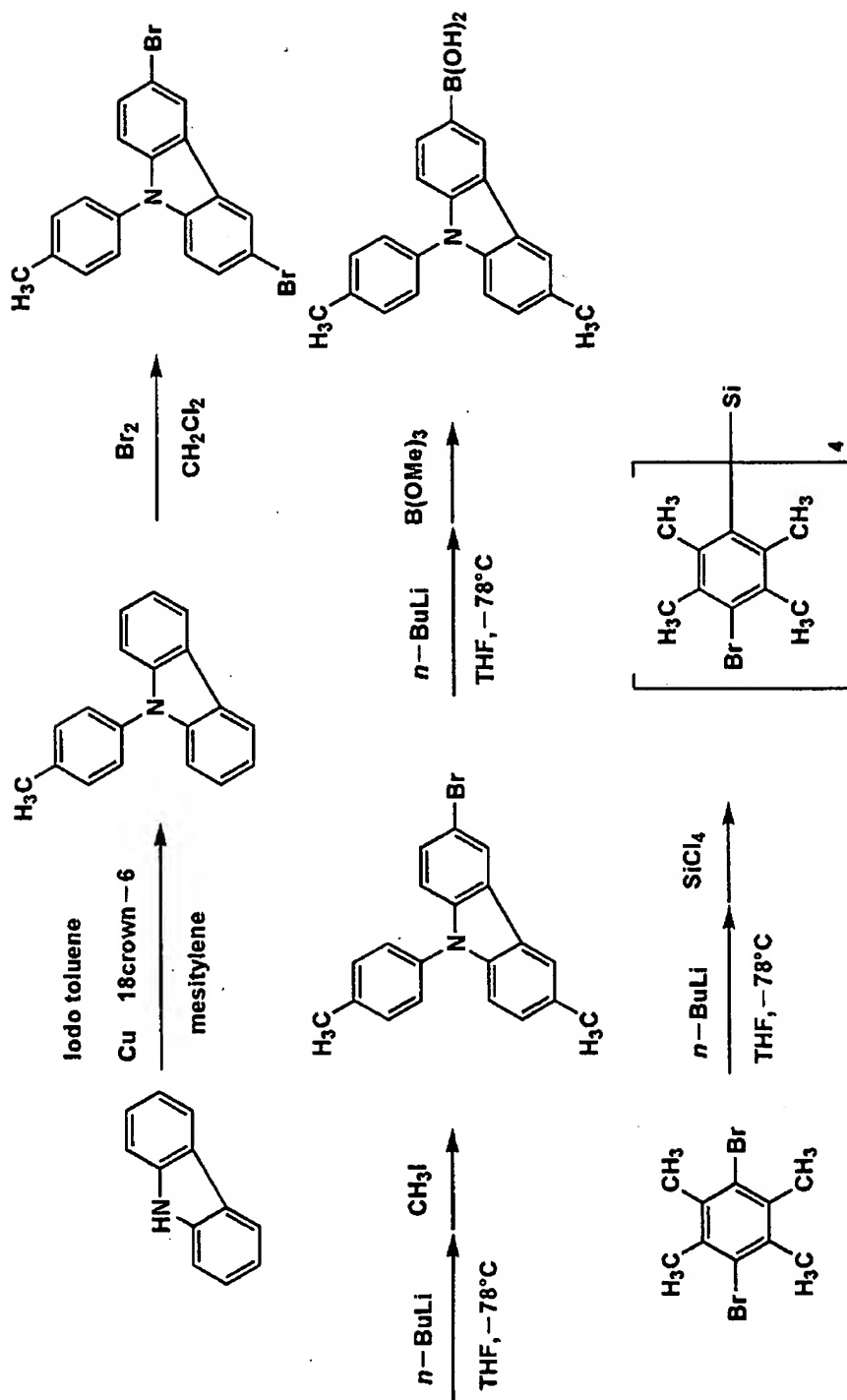
40

【 0 7 3 9 】

本発明に係る、一般式（C9-1）で表される化合物は従来公知の方法によって製造が可能である。以下に、例示した化合物C9-A-16について合成経路の一例を示すが、その他の化合物も同様の方法及び下記文献及び公知の合成法によって製造することが可能である。

【 0 7 4 0 】

【 化 4 6 4 】



10

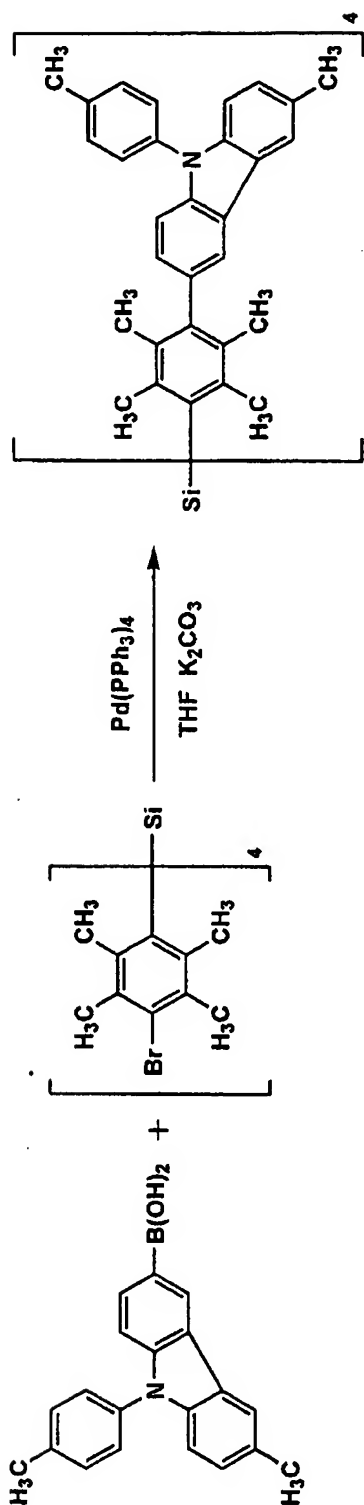
20

30

40

[ 0 7 4 1 ]  
 [ 化 4 6 5 ]





10

20

30

40

【0742】

Buchanan Tucker, J. Chem. Soc., 1958, 2750

Steinhoff Henry, J. Org. Chem., 29, 1964, 2808

Spialter et al, J. Amer. Chem. Soc., 77, 1955, 6227

各化合物は、NMR（核磁気共鳴スペクトル）及びマススペクトルにより同定することが 50

できる。

【0743】

一般式(C10-1)で表される化合物について説明する。

【0744】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子とは、該素子を構成する少なくとも一つの層に前記一般式(C10-1)で表される化合物を少なくとも一つ含有するが、好ましくは上記の化合物が発光層に含有されることである。

【0745】

特開2000-21572号公報、同2002-8860号公報において、カルバゾール誘導体の分子の真中のビアリール部位に連結基を導入している。ここに記載の化合物から、特定の連結基を残して、その連結基を互いにつないでいるアリール基を省略した分子構造とした場合に、有機EL素子材料としての特性が著しく改善される場合があることが分かった。

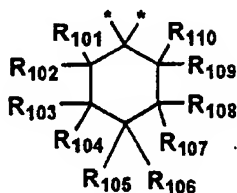
【0746】

これらの連結基は非芳香族系の環状連結基である。具体的には、下記一般式(a)～(g)に記載の基である。

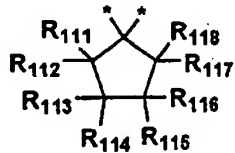
【0747】

【化466】

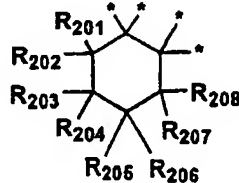
一般式(a)



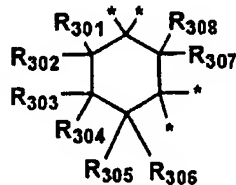
一般式(b)



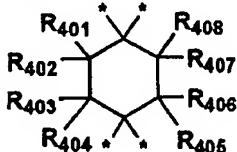
一般式(c)



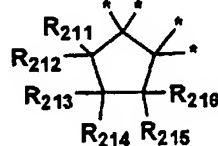
一般式(d)



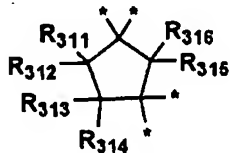
一般式(e)



一般式(f)



一般式(g)



【0748】

式中、R101～R110、R111～R118、R201～R208、R301～R308、R401～R408、R211～R216、R311～R316はそれぞれ水素原

10

20

30

40

50

子または置換基を表す。＊は連結部位を表す。

【0749】

このようなカルバゾール誘導体を有機EL素子材料として評価した結果、発光効率、及び発光寿命の改善効果が見られた。これは、カルバゾリル基を非芳香族系の環状連結基で連結させることにより化合物の特性が改善され、安定化効果が大きくなるものと推察している。

【0750】

一般式(C10-1)において、 $A_1$ は一般式(C10-2)で表され、同一でも異なってもよい。式中、 $X_1$ は非芳香族系の環状連結基であり、好ましくは一般式(a)～(g)で表される基を表す。一般式(a)～(g)において＊は連結する部位を表す。 $n$ は1～4の整数であり、好ましくは $n$ は2～4の整数である。但し、 $X_1$ が一般式(a)～(g)で表される基を表すときには、 $n$ は2または4である。

【0751】

一般式(C10-2)において、 $R_1$ 、 $R_2$ は各々独立して、水素原子または置換基を表す。 $R_1$ 、 $R_2$ が置換基を表す場合、その置換基としては、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、 $t$ -ブチル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アラルキル基(例えば、ベンジル基、2-フェネチル基等)、アリール基(例えば、フェニル基、ナフチル基、 $p$ -トリル基、 $p$ -クロロフェニル基、メシチル基等)、アルコキシ基(例えば、エトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等)、アリーロキシ基(例えば、フェノキシ基等)、シアノ基、水酸基、アルケニル基(例えば、ビニル基等)、スチリル基、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子等)、複素環基(例えば、ピロリル基、ピリジル基、フリル基、チエニル基等)等が挙げられる。これらの基は更に置換されていてもよい。 $R_1$ 、 $R_2$ が置換基を表す場合、好ましくはアルキル基、アルコキシ基またはアリーール基である。

【0752】

$n_a$ 、 $n_b$ は0～4の整数である。

【0753】

連結基である一般式(a)～(g)について説明する。

【0754】

$R_{101} \sim R_{110}$ 、 $R_{111} \sim R_{118}$ 、 $R_{201} \sim R_{208}$ 、 $R_{301} \sim R_{308}$ 、 $R_{401} \sim R_{408}$ 、 $R_{211} \sim R_{216}$ 、 $R_{311} \sim R_{316}$ は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 $R_{101} \sim R_{110}$ 、 $R_{111} \sim R_{118}$ 、 $R_{201} \sim R_{208}$ 、 $R_{301} \sim R_{308}$ 、 $R_{401} \sim R_{408}$ 、 $R_{211} \sim R_{216}$ 、 $R_{311} \sim R_{316}$ が置換基を表す場合、その置換基は $R_1$ 、 $R_2$ で述べた置換基と同義である。好ましくはアルキル基(例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基等)、アルコキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基等)等が挙げられる。

【0755】

一般式(a)～(g)で好ましくは(a)である。

【0756】

これらの化合物は、カルバゾリル基の任意の部分で互いに多量化してもよい。多量化する場合、任意の二価の連結基を介してもよいし、直接結合してもよい。多量化することによって、分子の熱安定性が向上するため、素子特性の向上にさらなる寄与が得られる。二価の連結基として、好ましくは置換または無置換のアリーレン基である。

【0757】

以下に、本発明の化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。カルバゾリル基が2個で、非芳香族系の環状連結基が $X_{11}$ のとき、その構造及び $X_{11}$ の具体例は下記で示される。更に、具体的カルバゾリル基はカルバゾリル基部分の $R_{12} \sim R_{26}$ 基の組み合わせでC-1～C-8の如く表される。従って、本発明の化合物の具体例はC-1～C-8とA-1～A-15の全ての組み合わせであり、本発明の例示化合物は例示

10

20

30

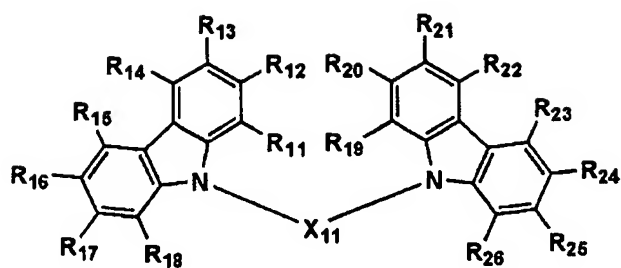
40

50

(C-1) (A-3) の如く表される。

【0758】

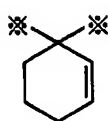
【化467】



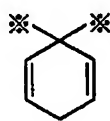
10

$X_{11}$ :

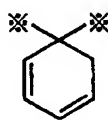
A-1



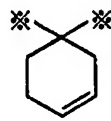
A-2



A-3



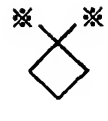
A-4



A-5



A-6

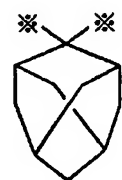


20

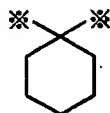
A-7



A-8



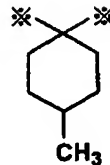
A-9



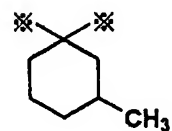
A-10



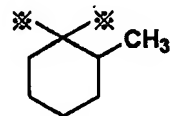
A-11



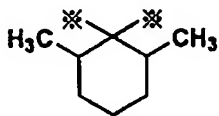
A-12



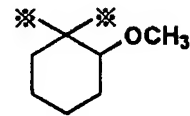
A-13



A-14



A-15



30

※は連結部位を表す。

【0759】

【化468】

40

	R <sub>12</sub> , R <sub>14</sub> , R <sub>15</sub> , R <sub>17</sub> , R <sub>20</sub> , R <sub>22</sub> , R <sub>23</sub> , R <sub>25</sub> の基	R <sub>13</sub> , R <sub>16</sub> , R <sub>21</sub> , R <sub>24</sub> の基	R <sub>11</sub> , R <sub>18</sub> , R <sub>19</sub> , R <sub>28</sub> の基
C-1	水素原子	水素原子	水素原子
C-2	水素原子	水素原子	メチル基
C-3	水素原子	メチル基	水素原子
C-4	水素原子	t-ブチル基	水素原子
C-5	水素原子	フェニル基	水素原子
C-6	水素原子	メシチル基	水素原子
C-7	水素原子	R <sub>13</sub> , R <sub>16</sub> :メチル基、 R <sub>21</sub> , R <sub>24</sub> :水素原子	水素原子
C-8	水素原子	R <sub>13</sub> , R <sub>16</sub> :メシチル基 R <sub>21</sub> , R <sub>24</sub> :水素原子	水素原子

## 【0760】

カルバゾリル基が4個で、非芳香族系の環状連結基がX<sub>21</sub>のとき、その構造及びX<sub>21</sub>の具体例は下記で示される。更に、具体的カルバゾリル基はカルバゾリル基部分のR<sub>31</sub>～R<sub>62</sub>基の組み合わせでD-1～D-9の如く表される。従って、本発明の化合物の具体例はD-1～D-9とB-1～B-7の全ての組み合わせであり、本発明の例示化合物は例示(D-2)(B-5)の如く表される。

## 【0761】

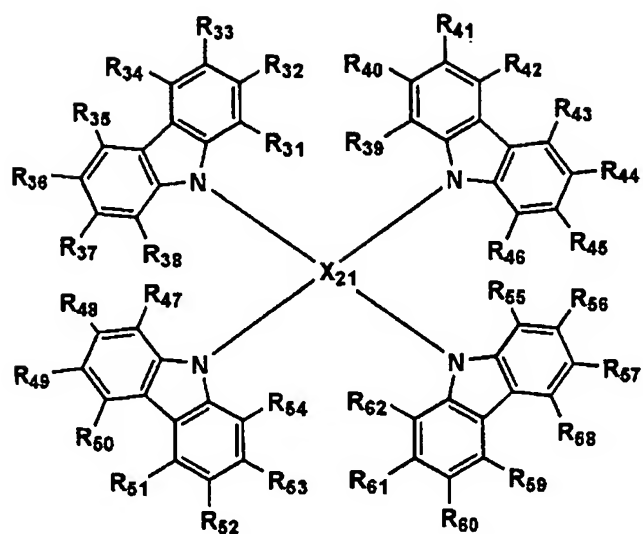
## 【化469】

10

20

30

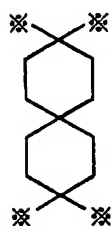
40



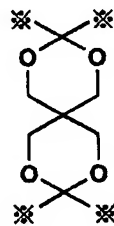
10

 $X_{21}$ :

B-1



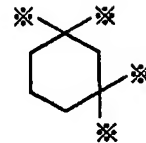
B-2



B-3

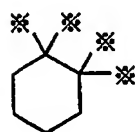


B-4

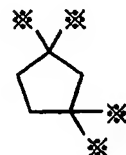


20

B-5



B-6



B-7



30

※は連結部位を表す。

【 0 7 6 2 】

【 化 4 7 0 】

	R32, R34, R35, R37, R40, R42, R43, R45, R48, R50, R51, R53, R56, R58, R59, R61の基	R33, R36, R41, R44, R49, R52, R57, R60の基	R31, R38, R39, R46, R47, R54, R55, R62の基
D-1	水素原子	水素原子	水素原子
D-2	水素原子	水素原子	メチル基
D-3	水素原子	メチル基	水素原子
D-4	水素原子	tert-ブチル基	水素原子
D-5	水素原子	フェニル基	水素原子
D-6	水素原子	メシチル基	水素原子
D-7	水素原子	R33, R36, R57, R60 : メチル基、 R41, R44, R49, R52 : 水素原子	水素原子
D-8	水素原子	R33, R36, R57, R60 : メシチル基 R41, R44, R49, R52 : 水素原子	水素原子
D-9	水素原子	水素原子	R31, R38, R55, R62 : メチル基、 R39, R46, R47, R54 : 水素原子

10

20

30

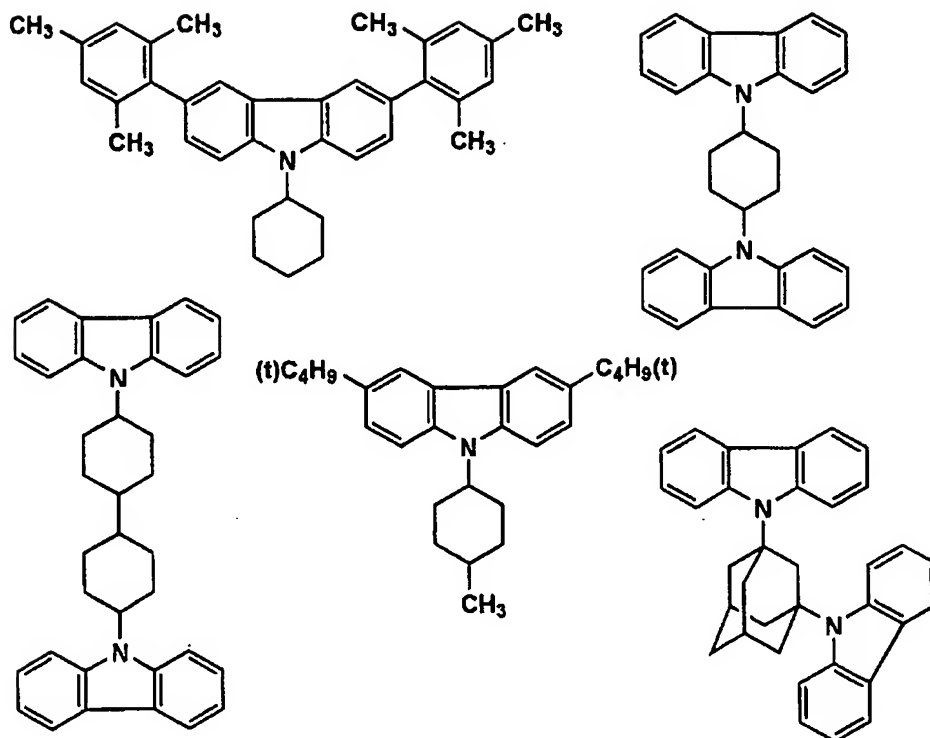
40

【0763】

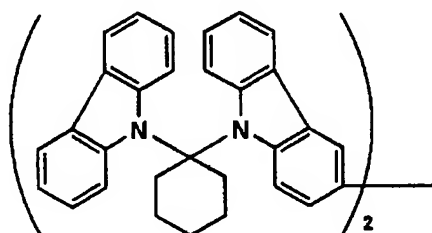
また、上記組み合わせで表現されない本発明の具体的化合物として、以下が挙げられる。

【0764】

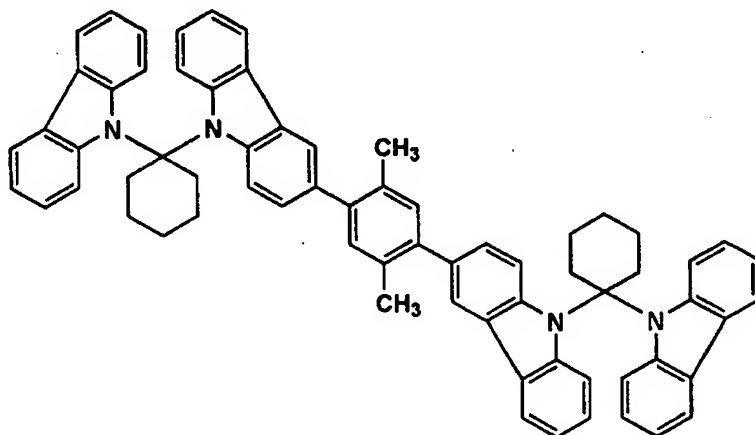
【化471】



例示1



例示2



## 【0765】

本発明の化合物の代表的製造例を以下に示す。その他の化合物についても同様の方法により製造することができる。

## 【0766】

合成例：例示（C-1）（A-9）の合成

1, 1'-ジブロモシクロヘキサン 2.0 g、カルバゾール 2.8 g 及びカリウム-t- 50



ブトキシド 1.9 g をジメチルホルムアミドに溶解し、9 時間加熱還流した。反応終了後、有機層を抽出し、カラム精製を行った。精製後の化合物を酢酸エチルで再結晶し、白色の例示 (C-1) (A-9) を得た (収率 52%)。NMR スペクトル、マスペクトルにより例示 (C-1) (A-9) であることを確認した。

【0767】

合成例：例示 (D-1) (B-1) の合成

化合物 (B) とカルバゾールを合成例 1 と同様の方法により反応させ、例示 (D-1) (B-1) を得た。NMR スペクトル、マスペクトルにより例示 (D-1) (B-1) であることを確認した。

【0768】

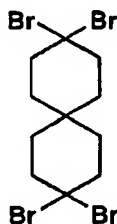
合成例：例示 1 の合成

3-ブロモカルバゾールとカルバゾールと 1, 1'-ジブロモシクロヘキサンを合成例 1 と同様の方法により反応させ、化合物 (C) を得た。化合物 (C) を従来公知の方法により、ボロン酸に変更した (化合物 D)。化合物 (C) と化合物 (D) をテトラヒドロフラン中、塩基の存在下、パラジウム触媒を用いて 20 時間加熱還流させた。反応終了後、有機層を抽出し、カラム精製を行った。精製後の化合物をトルエンで再結晶させると、白色の例示 1 を得ることができる。

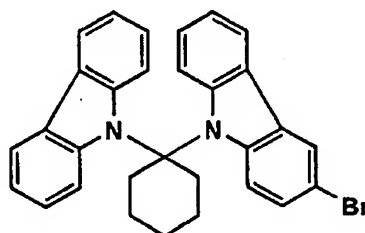
【0769】

【化 472】

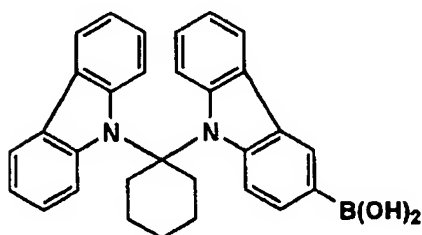
化合物(B)



化合物(C)



化合物(D)



【0770】

一般式 (C11-1) で表されるカルバゾール誘導体化合物について詳しく説明する。

【0771】

一般式 (C11-1) における A は、芳香環残基を表し、その例としてはベンゼン、ピリジン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、1, 3, 5-トリアジン、1, 2, 4-トリアジン、ピロール、イミダゾール、フラン、チオフェン、アズレン等が挙げられる。さらに、これらの芳香環残基の任意の組み合わせによる縮合芳香環残基であってもよく、こうした縮合芳香環残基の例としてはナフタレン、アントラセン、ジチエノベンゼン、カルバゾール、キノリン等を挙げることができるが、縮合していない単環式の芳香環残基である

方がより好ましい。これらの芳香環残基は置換基を有していてもよく、置換基の例としてはアルキル基（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、（t）ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基等）、シクロアルキル基（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アルケニル基（例えば、ビニル基、アリル基等）、アルキニル基（例えば、プロパルギル基等）、アリール基（例えば、フェニル基、ナフチル基等）、複素環基（例えば、ピリジル基、チアゾリル基、オキサゾリル基、イミダゾリル基、フリル基、ピロリル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、セレナゾリル基、スルホラニル基、ピペリジニル基、ピラゾリル基、テトラゾリル基等）、ハロゲン原子（例えば、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、フッ素原子等）、アルコキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキシ基、ドデシルオキシ基等）、シクロアルコキシ基（例えば、シクロペンチルオキシ基、シクロヘキシルオキシ基等）、アリールオキシ基（例えば、フェノキシ基、ナフチルオキシ基等）、アルキルチオ基（例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、ドデシルチオ基等）、シクロアルキルチオ基（例えば、シクロペンチルチオ基、シクロヘキシルチオ基等）、アリールチオ基（例えば、フェニルチオ基、ナフチルチオ基等）、アルコキシカルボニル基（例えば、メチルオキシカルボニル基、エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカルボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等）、アリールオキシカルボニル基（例えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等）、スルファモイル基（例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメチルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノスルホニル基、2-ピリジルアミノスルホニル基等）、ウレイド基（例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、ドデシルウレイド基、フェニルウレイド基、ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミノウレイド基等）、アシル基（例えば、アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボニル基、ピリジルカルボニル基等）、アシルオキシ基（例えば、アセチルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基等）、アミド基（例えば、メチルカルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ジメチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカルボニルアミノ基、シクロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシルカルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等）、カルバモイル基（例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミノカルボニル基、2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノカルボニル基等）、スルフィニル基（例えば、メチルスルフィニル基、エチルスルフィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2-エチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2-ピリジルスルフィニル基等）、アルキルスルホニル基またはアリールスルホニル基（例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルスルホニル基、シクロヘキシルスルホニル基、2-エチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基、フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2-ピリジルスルホニル基等）、アミノ基（例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2-エチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナフ

10

20

30

40

50

チルアミノ基、2-ピリジルアミノ基等)、ニトロ基、シアノ基、ヒドロキシ基、ハロゲン原子等が挙げられる。なおこれらの基は、更に上記の置換基によって置換されていてもよいし、また、それらが互いに縮合して更に環を形成してもよい。

【0772】

一般式(C11-1)において $R_1 \sim R_8$ はいずれも水素原子または置換基を表し、これらが同時に水素原子であることはなく、すなわち一般式1のAに結合しているのはカルバゾール誘導体残基である。置換基の例としては前記一般式(C11-1)のAに結合する置換基の例と同様であるが、 $R_2 \sim R_7$ については水素原子、脂肪族基、脂肪族オキシ基、脂肪族チオ基、芳香族基、芳香族オキシ基、芳香族チオ基であることが好ましく、さらには $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_6$ 、 $R_7$ の少なくともいずれかに置換基を有している場合がより好ましい。また $R_1$ 及び $R_8$ としては水素原子、ハロゲン原子、フッ化アルキル基のいずれかであることが好ましい。

10

【0773】

一般式1においてnは自然数を表し、nが2以上である場合には、Aで表される芳香環骨格に複数のカルバゾール誘導体残基が結合することになるが、この場合複数のカルバゾール誘導体残基は同じであっても異なってもよい。

【0774】

本発明に係る化合物は、後述する有機EL素子の正孔輸送層、電子輸送層、発光層のいずれに用いることも可能であるが、好ましくは電子輸送層または発光層、特に好ましくは発光層において磷光発光性化合物へエネルギーを移動させて自身は発光することのない、当業に従事する技術者に「ホスト化合物」として知られる材料として用いた場合、量子効率と発光輝度に優れ、特に耐久性について高い性能を示す有機EL素子を作製することができる。本発明に係る化合物が公知の材料に対して優れた特性を示すことができる理由または動作機構については明らかではないが、置換基を有していないカルバゾール残基が有機EL素子としての動作時または保存時、特に動作時において電氣的・熱的エネルギーにより分解するためか、または励起状態において好ましくならざる化学反応を生じて分解するために、材料としての安定性を損なっているのではないかと推測される。本発明に係る化合物は置換基を有することによって、このような不安定性を減じることができ、これにより耐久性の高い有機EL素子の作製に好適なのではないかと考えられる。

20

【0775】

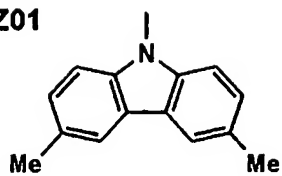
以下にZ01~Z24として、本発明に係る化合物の部分構造をなすカルバゾール誘導体残基の例を示し、これらを部分構造とする本発明に係る化合物の例をC11-1~C11-63として示した。しかしながら、本発明の態様がこれらZ01~Z24及びC11-1~C11-63の構造によって限定されるものではない。

30

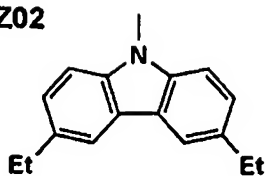
【0776】

【化473】

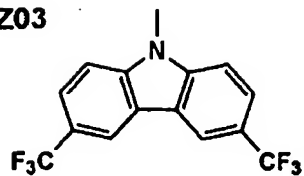
Z01



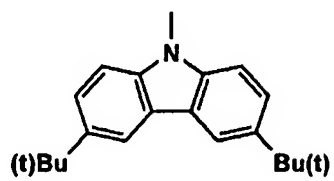
Z02



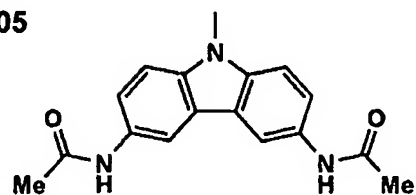
Z03



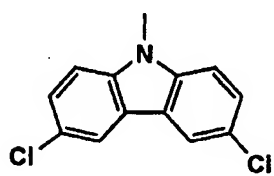
Z04



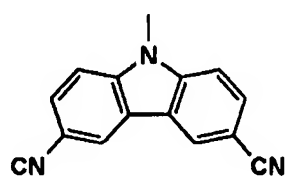
Z05



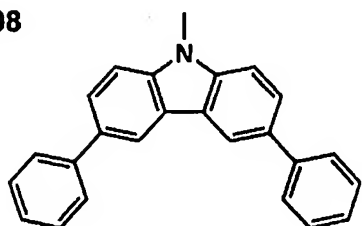
Z06



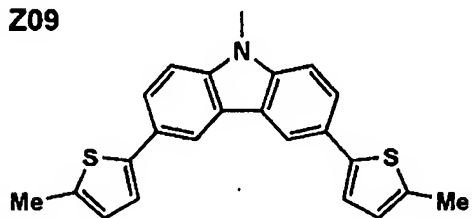
Z07



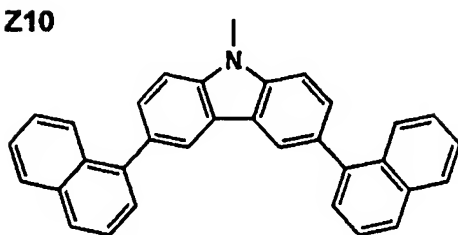
Z08



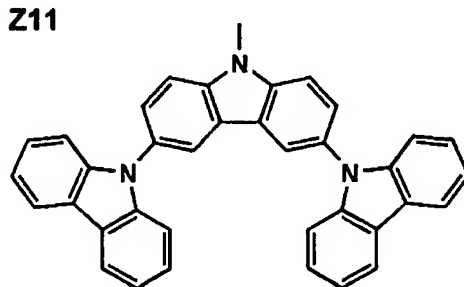
Z09



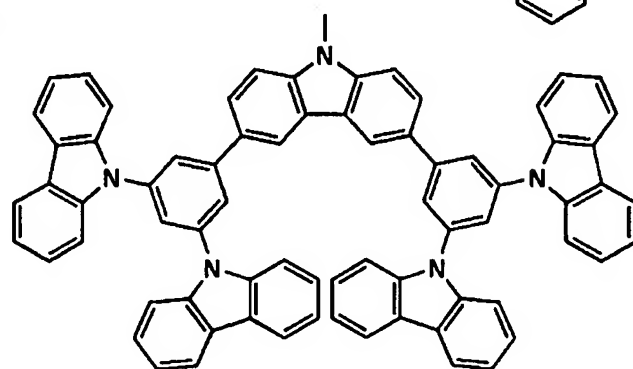
Z10



Z11



Z12



10

20

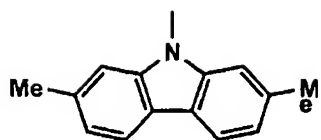
30

40

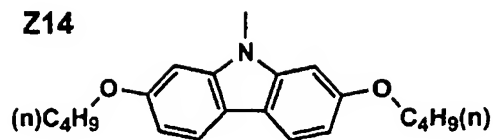
【 0 7 7 7 】

【 化 4 7 4 】

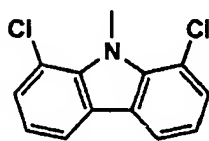
Z13



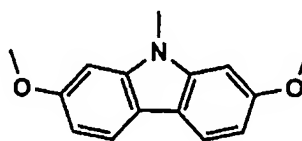
Z14



Z15

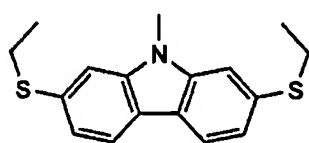


Z16

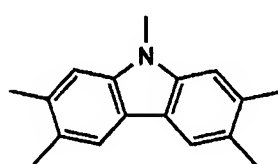


10

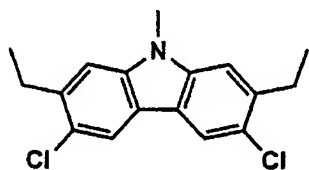
Z17



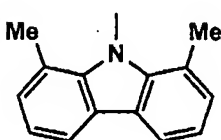
Z18



Z19

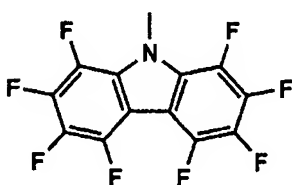


Z20

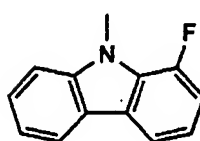


20

Z21

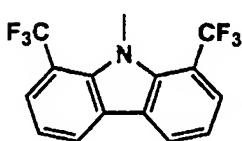


Z22

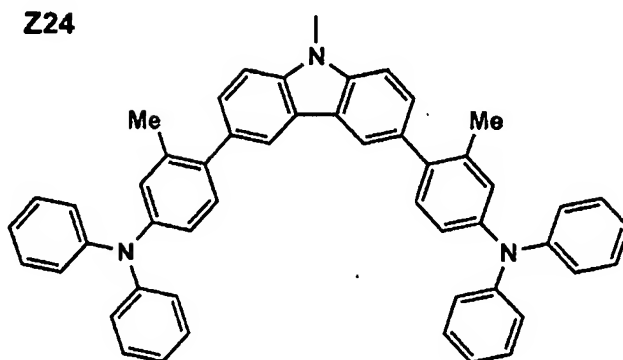


30

Z23



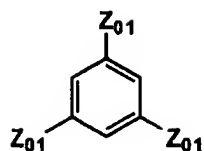
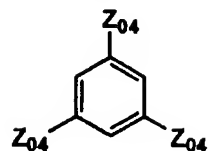
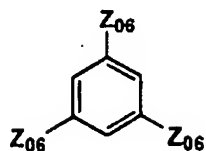
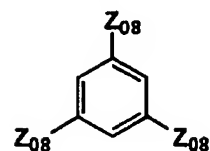
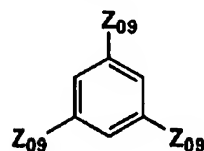
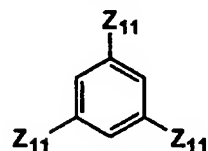
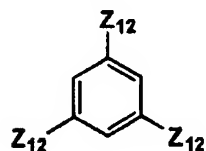
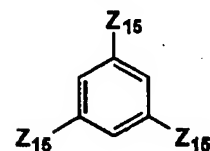
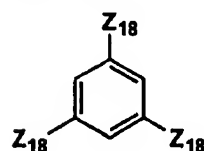
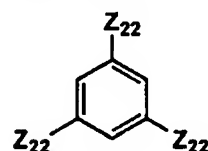
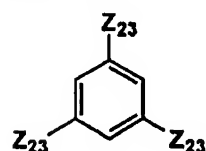
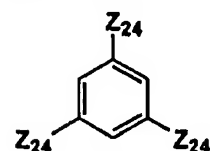
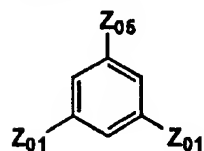
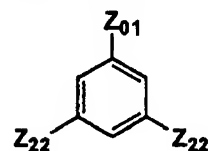
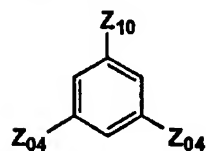
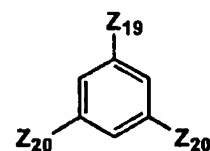
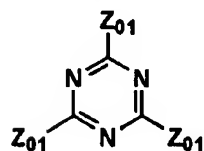
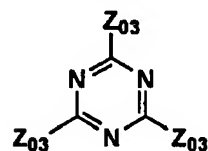
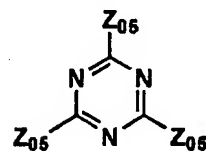
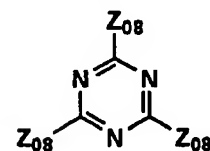
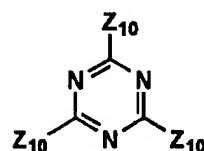
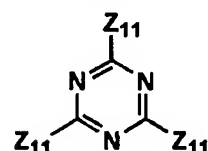
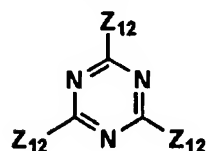
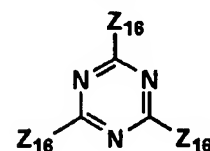
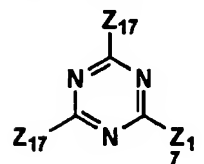
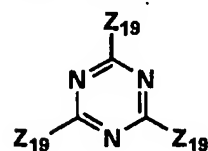
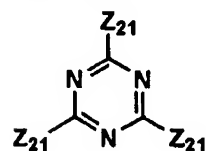
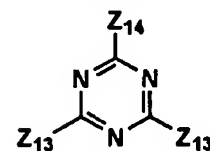
Z24



40

【 0 7 7 8 】

【 化 4 7 5 】

**C11-1****C11-2****C11-3****C11-4****C11-5****C11-6****C11-7****C11-8****C11-9****C11-10****C11-11****C11-12****C11-13****C11-14****C11-15****C11-16****C11-17****C11-18****C11-19****C11-20****C11-21****C11-22****C11-23****C11-24****C11-25****C11-26****C11-27****C11-28**

10

20

30

40

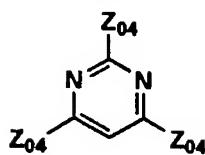
【 0 7 7 9 】

【 化 4 7 6 】

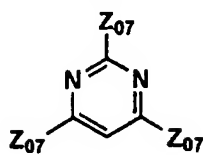
C11-29



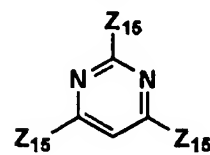
C11-30



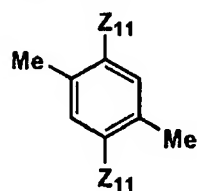
C11-31



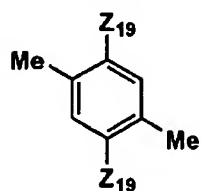
C11-32



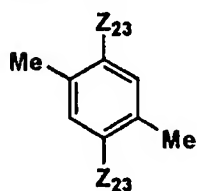
C11-33



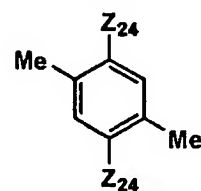
C11-34



C11-35



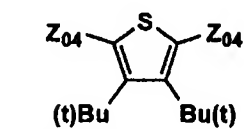
C11-36



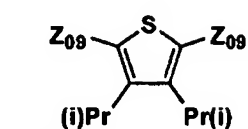
C11-37

C11-38

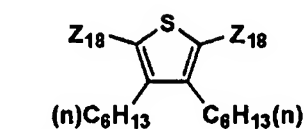
C11-39



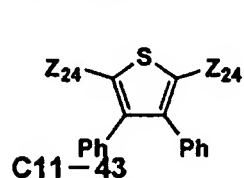
C11-40



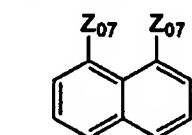
C11-41



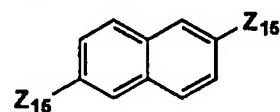
C11-42



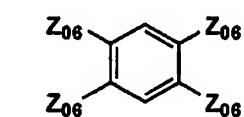
C11-43



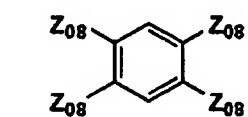
C11-44



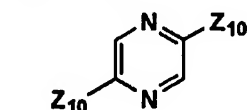
C11-45



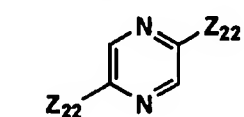
C11-46



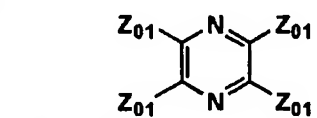
C11-47



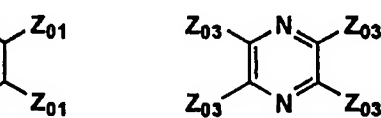
C11-48



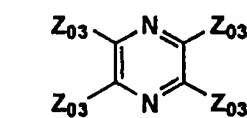
C11-49



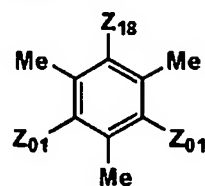
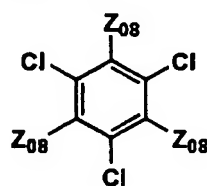
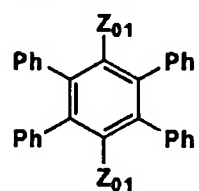
C11-50



C11-51



C11-52



[ 0 7 8 0 ]

[ 化 4 7 7 ]

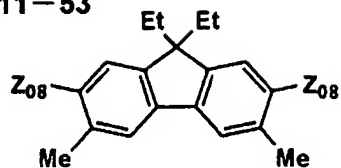
10

20

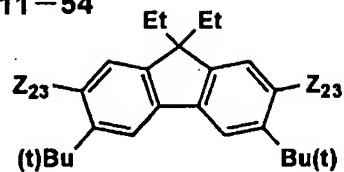
30

40

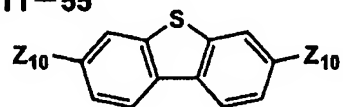
C11-53



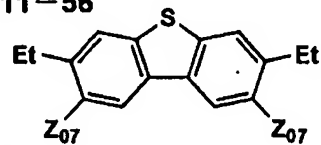
C11-54



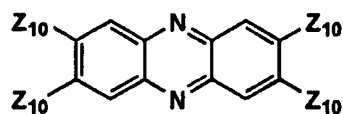
C11-55



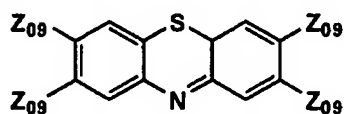
C11-56



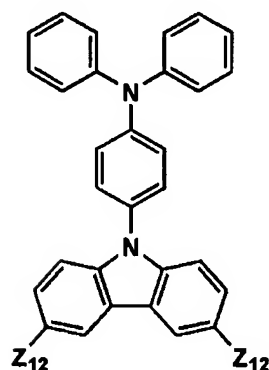
C11-57



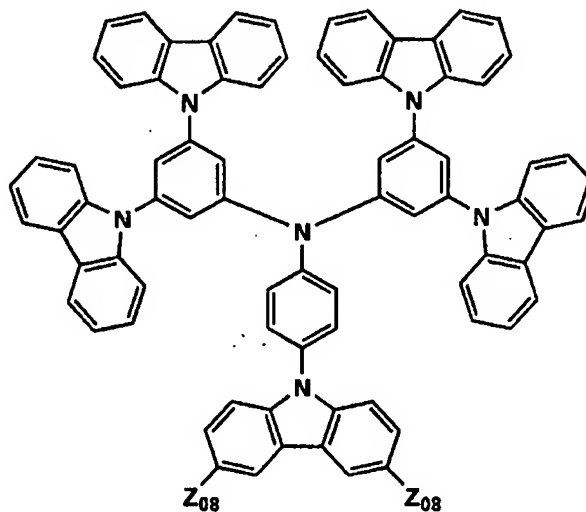
C11-58



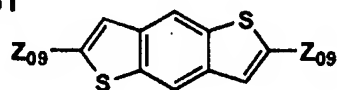
C11-59



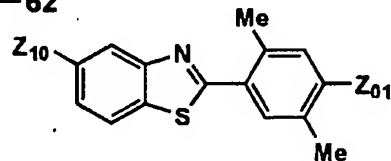
C11-60



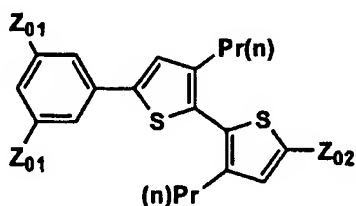
C11-61



C11-62



C11-63



【0781】

また、本発明に係る化合物の分子量は600～2000であることが好ましい。分子量が600～2000であるとTg（ガラス転移温度）が上昇し、熱安定性が向上し、素子寿命が改善される。より好ましい分子量は800～2000である。

【0782】

本発明に係る化合物は、Tetrahedron Lett., 39 (1998), 23 50



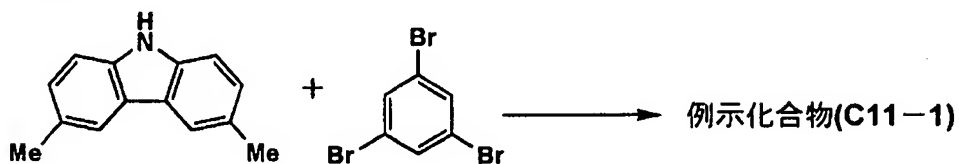
67-2370ページ、日本国特許3161360号、Angew. Chem. Int. Ed., 37(1998), 2046-2067ページ、Tetrahedron Lett., 41(2000), 481-484ページ、Synth. Commun., 11(7), (1981), 513-519ページ、及びChem. Rev., 2002, 102, 1359-1469ページ等に記載の合成反応等、当業に従事する技術者には周知の合成方法によって製造することができる。以下に、例示した化合物C11-1及びC11-21について合成経路の一例を示すが、その他の化合物も同様の方法及び前記文献及び公知の合成法によって製造することが可能である。

【0783】

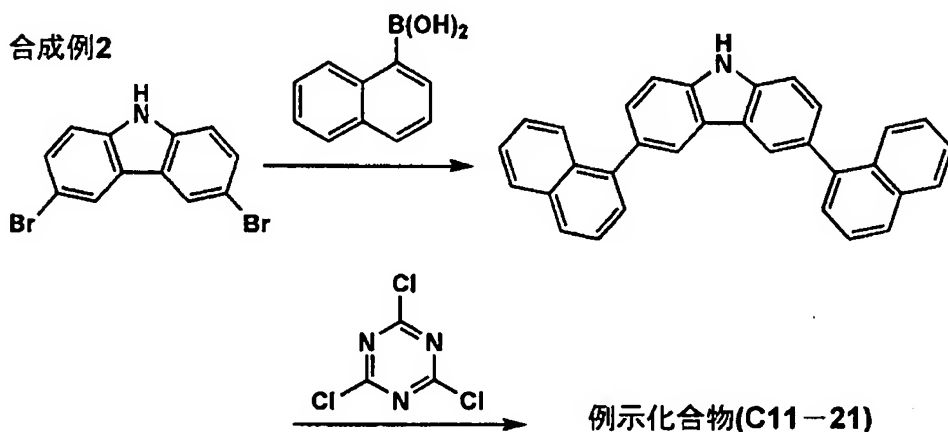
【化478】

10

### 合成例1



### 合成例2



20

30

【0784】

本発明に係る一般式(C12-1)で表される化合物(Siとカルバゾール誘導体から構成される化合物)について説明する。

【0785】

一般式(C12-1)の式中、Rは水素原子又は置換基を表す。置換基としては脂肪族炭化水素基、芳香族基、芳香族ヘテロ環基を表し、好ましくは脂肪族炭化水素基であり、より好ましくはアルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アルケニル基(ビニル基、プロペニル基、スチリル基等)である。これらのアルキル基は置換基を有してもよい。

40

【0786】

Lは単なる結合手又は置換基を有さないフェニレン基を表す。

【0787】

Aはカルバゾール残基を表し、Lとの結合部位がカルバゾール骨格のN位である場合は、カルバゾール残基の少なくとも一つ以上の置換箇所に、それぞれ置換基を有してもよいアルキル基(メチル基、エチル基、i-プロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、t-ブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)。た

50

だし、カルバゾール環の2位と7位に置換する場合は $t$ -ブチル基であることはない)、アルキルオキシ基(メトキシ基、エトキシ基、 $i$ -プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(フェノキシ基等)、アルキルチオ基(メチルチオ基、エチルチオ基、 $i$ -プロピルチオ基等)、アリールチオ基(フェニルチオ基等)、アルキルアミノ基(ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等)、アリールアミノ基(アニリノ基、ジフェニルアミノ基等)若しくは複素環基(フリル基、チエニル基、ピロール基、ピリミジル基、ピラジン基、トリアジン基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)又は置換基を有するフェニル基(トリル基、キシリル基、トリメチルフェニル基、テトラメチルフェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基等)又はアミノ基が置換されている。また、 $L$ との結合がカルバゾール骨格の $N$ 位以外である場合は、 $N$ 位にはそれぞれ置換基を有してもよい分岐アルキル基( $i$ -プロピル基、 $s$ -ブチル基、 $t$ -ブチル基、 $t$ -アミル基等)、アルキルオキシ基(メトキシ基、エトキシ基、 $i$ -プロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(フェノキシ基等)、アルキルチオ基(メチルチオ基、エチルチオ基、 $i$ -プロピルチオ基等)、アリールチオ基(フェニルチオ基等)、アルキルアミノ基(ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルメチルアミノ基等)、アリールアミノ基(アニリノ基、ジフェニルアミノ基等)若しくは複素環基(フリル基、チエニル基、ピロール基、ピリミジル基、ピラジン基、トリアジン基、ピロリジル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基等)又は置換基を有するフェニル基(トリル基、キシリル基、トリメチルフェニル基、テトラメチルフェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基等)又はアミノ基が置換されている。 $n$ は3又は4の整数を表すが、4が好ましい。

10

20

#### 【0788】

高性能有機EL素子を作製するためには、一般的に真空蒸着法が可能で、かつ、均一なアモルファスガラスを形成する材料を使用することが望ましい。使用される材料の分子量が350未満であると、ガラス転移温度が低く耐熱性に乏しい素子しか作製できず、また、ガラス状態の安定性に欠けるために結晶化しやすいことから、安定な素子を作製できない等の問題がある。一方、分子量が3000を超えるような高分子量では、真空蒸着による成膜ができない傾向があり、高性能有機ELを作製する上では問題となっている。

30

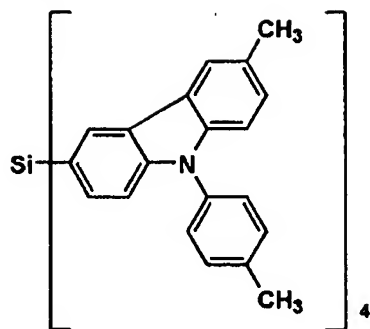
#### 【0789】

以下に、具体的化合物例を示すが、本発明における化合物がこれらに限定されるものではない。

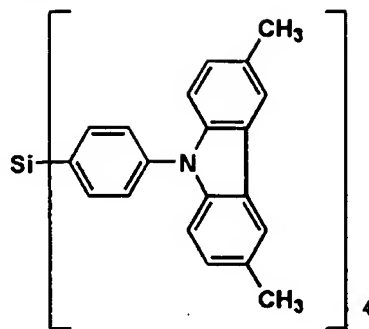
#### 【0790】

#### 【化479】

C12-A-1

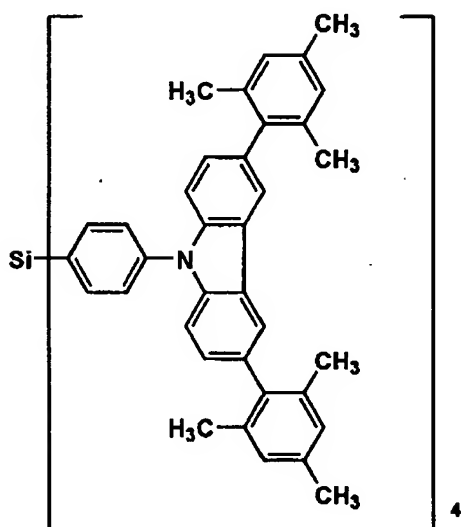


C12-A-2

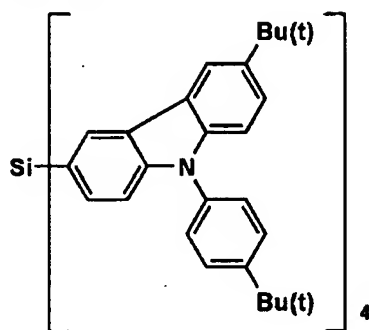


10

C12-A-3

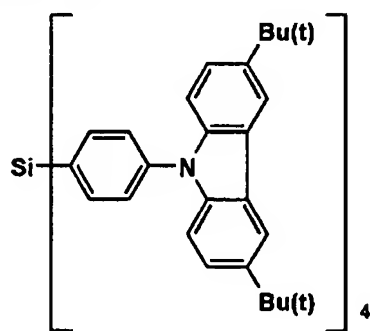


C12-A-4



20

C12-A-5



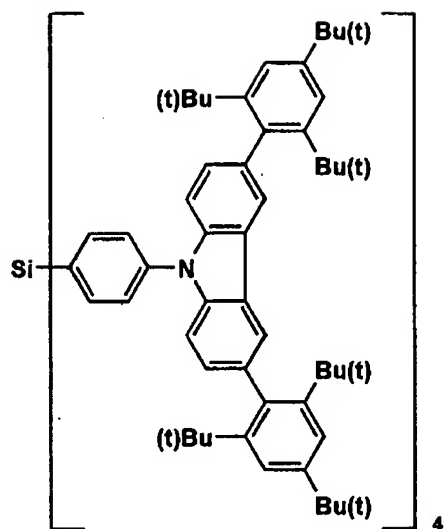
30

40

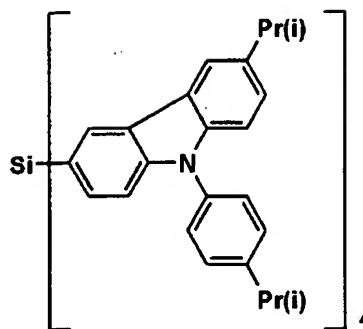
【 0 7 9 1 】

【 化 4 8 0 】

C12-A-6

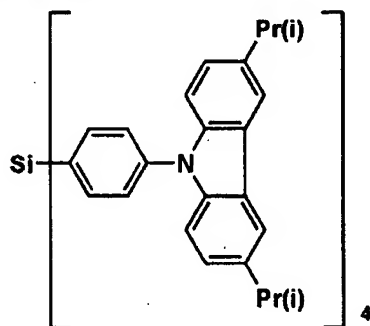


C12-A-7

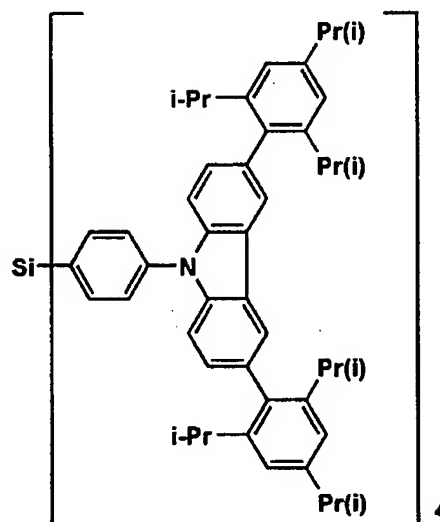


10

C12-A-8

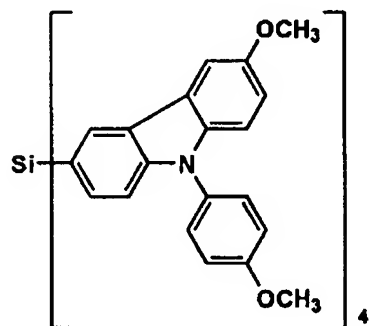


C12-A-9



20

C12-A-10



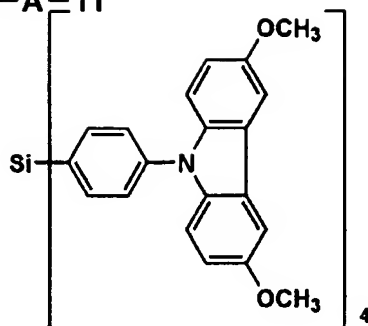
30

40

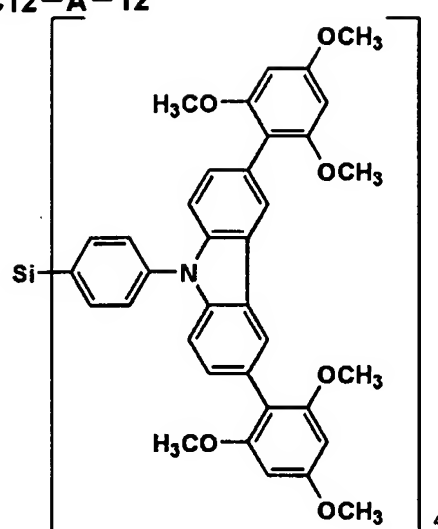
【 0 7 9 2 】

【 化 4 8 1 】

C12-A-11

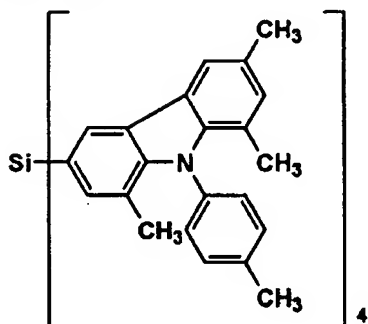


C12-A-12

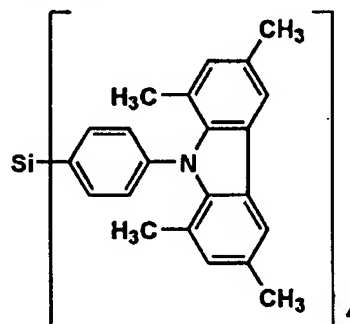


10

C12-A-13

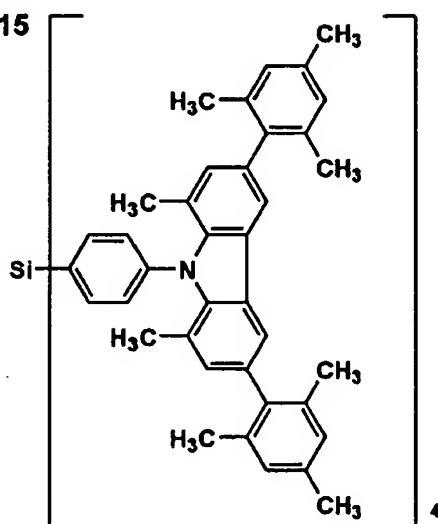


C12-A-14



20

C12-A-15



30

40

## 【0793】

上記一般式（C12-1）で表される化合物は、有機EL素子を構成する、下記に示すような何れかの層（例えば、正孔輸送層、発光層、正孔ブロック層、電子輸送層等）に含有していてもよいが、特に、後述するようにホスト化合物として発光層に含有する場合、または、発光層に隣接する層に含有する場合に、更に、高発光輝度、高発光効率を示し、かつ、耐久性が向上した有機EL素子が提供できることがわかった。

50

## 【0794】

本発明に係る一般式(C12-1)で表される化合物の、有機EL素子を構成するいずれか1層中での含有量としては、50質量%以上であることが好ましく、更に好ましくは、80～95質量%であり、特に好ましくは、90～95質量%である。

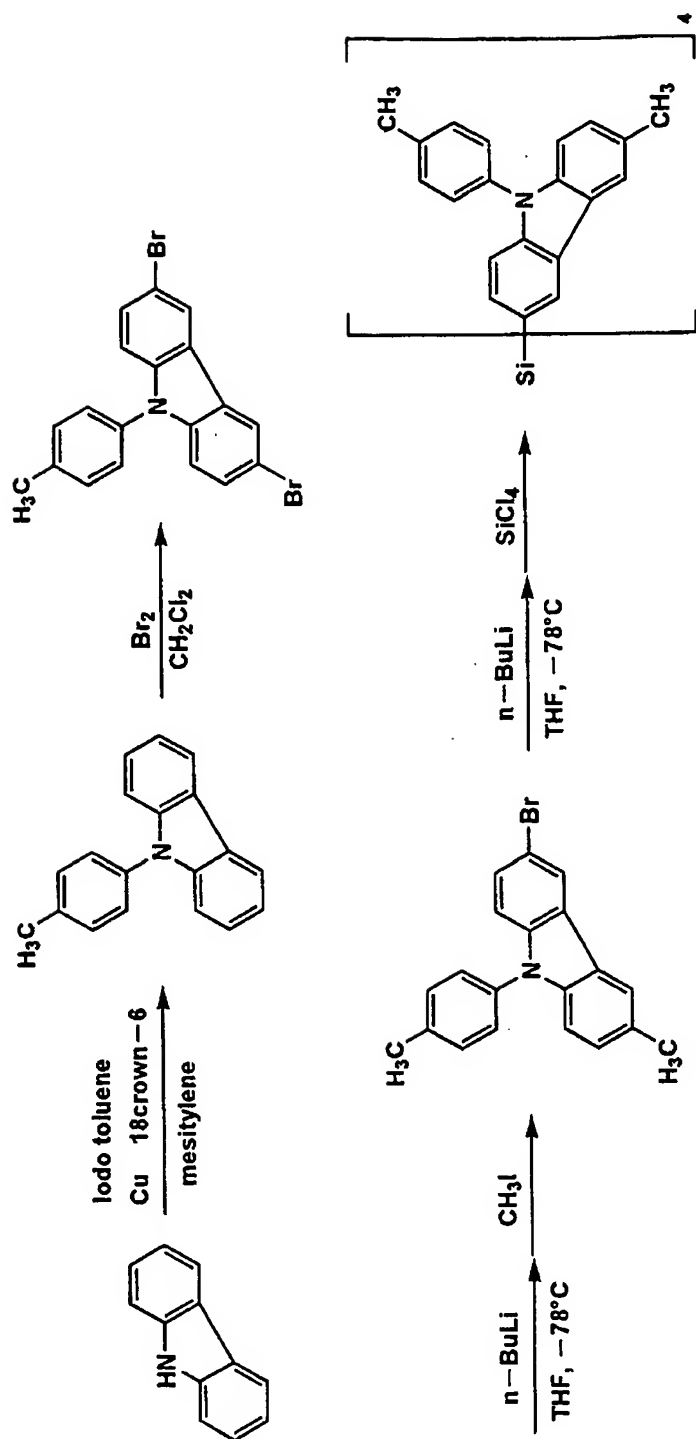
## 【0795】

本発明に係る、一般式(C12-1)で表される化合物は従来公知の方法によって製造が可能である。以下に、例示した化合物C12-A-1について合成経路の一例を示すが、その他の化合物も同様の方法及び下記文献及び公知の合成法によって製造することが可能である。

## 【0796】

10

## 【化482】



10

20

30

40

【0797】

Buchanan Tucker, J. Chem. Soc., 1958, 2750

Steinhoff Henry, J. Org. Chem., 29, 1964, 2808

Spialter et al, J. Amer. Chem. Soc., 77, 1955, 6227

各化合物は、NMR（核磁気共鳴スペクトル）及びマスペクトルにより同定することができる。

50

## 【0798】

一般式 (D1-1) ~ (D1-4) で表される化合物について説明する。

## 【0799】

一般式 (D1-1) において、 $X_{11}$ 、 $X_{12}$ 、 $X_{13}$ 、 $X_{14}$  は C-Ra または N を表し、 $X_{11}$ 、 $X_{12}$ 、 $X_{13}$ 、 $X_{14}$  の少なくとも一つは N を表す。一般式 (D1-3) において、 $X_{31}$ 、 $X_{32}$  は C-Rb または N を表し、 $X_{31}$ 、 $X_{32}$  の少なくとも一つは N を表す。

## 【0800】

一般式 (D1-1) ~ (D1-4) において、Ra、Rb、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$ 、 $R_{43}$ 、 $R_{44}$ 、 $R_{45}$ 、 $R_{46}$  は各々独立して、水素原子または置換基を表す。 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{41}$ 、 $R_{42}$  は置換基を表す。

10

## 【0801】

一般式 (D1-3) において、 $Z_1$  は環を形成するのに必要な原子群を表す。 $Z_1$  で表される環を形成するのに必要な原子群としては、3員以上の環であれば特に限定されるものではなく、炭素原子と水素原子のみで構成された炭化水素環でもよく、またヘテロ原子を含んでいる複素環でもよい。好ましくは5~7員の環である。また、これらは任意の置換基を複数個それぞれ独立に有していてもよい。

## 【0802】

一般式 (D1-1) ~ (D1-4) において、Ra、Rb、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$ 、 $R_{43}$ 、 $R_{44}$ 、 $R_{45}$ 、 $R_{46}$ 、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{41}$ 、 $R_{42}$  が置換基を表す場合、その置換基としては、アルキル基（例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロ-n-ブチル基、パーフルオロ-t-ブチル基、t-ブチル基等）、シクロアルキル基（例えばシクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アラルキル基（例えばベンジル基、2-フェネチル基等）、アリール基（例えばフェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等）、アルコキシ基（例えばエトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等）、アリールオキシ基（例えばフェノキシ基等）、シアノ基、水酸基、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等）等が挙げられる。これらの基はさらに置換されていてもよい。

20

## 【0803】

一般式 (D1-1) ~ (D1-4) において、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{41}$ 、 $R_{42}$  がアルキル基またはアリール基である場合が最も好ましい。

30

## 【0804】

次に、一般式 (D1-5) ~ (D1-8) で表される化合物について説明する。

## 【0805】

一般式 (D1-5) において、Ar は芳香族環、A は非共役の複素環、 $n_1$  は2~6の整数を表す。

## 【0806】

一般式 (D1-6) において、B は非共役の複素環、 $n_2$  は2~6の整数を表す。Ar で表される芳香族環としては、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、トリアジン、フラン、チオフェン、ピロール等が挙げられる。A、B で表される非共役の複素環としては、3員以上の非共役の複素環であれば特に限定されるものではない。好ましくは5~7員の非共役の複素環であり、最も好ましくは5員の非共役の複素環である。また、これらは任意の置換基を複数個それぞれ独立に有していてもよい。本発明でいうところの非共役の複素環とは、複素環化合物のうち共役の複素環化合物を除いた共役していない複素環化合物を表す。

40

## 【0807】

一般式 (D1-6) において、 $n_2$  は2または3であることが好ましい。一般式 (6) で表される化合物のうち、B は一般式 (D1-7) または (D1-8) で表されることが好ましい。特に一般式 (D1-7) で表されることが好ましい。

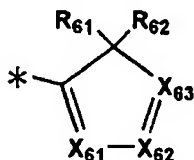
50



【0808】

【化483】

## 一般式(D1-7)



10

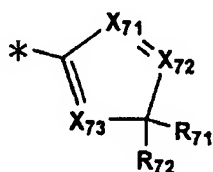
【0809】

式中、 $X_{61}$ 、 $X_{62}$ 、 $X_{63}$ はC-R<sub>c</sub>またはNを表し、 $X_{61}$ 、 $X_{62}$ 、 $X_{63}$ の少なくとも一つはNを表す。R<sub>c</sub>は水素原子または置換基を、R<sub>61</sub>、R<sub>62</sub>は置換基を表す。\*はベンゼン環との結合部位を表す。

【0810】

【化484】

## 一般式(D1-8)



20

【0811】

式中、 $X_{71}$ 、 $X_{72}$ 、 $X_{73}$ はC-R<sub>d</sub>またはNを表し、 $X_{71}$ 、 $X_{72}$ 、 $X_{73}$ の少なくとも一つはNを表す。R<sub>d</sub>は水素原子または置換基を、R<sub>71</sub>、R<sub>72</sub>は置換基を表す。\*はベンゼン環との結合部位を表す。

30

【0812】

一般式(D1-7)、(D1-8)において、 $X_{61}$ 、 $X_{62}$ 、 $X_{63}$ はC-R<sub>c</sub>またはNを表し、 $X_{61}$ 、 $X_{62}$ 、 $X_{63}$ の少なくとも一つはNを表す。 $X_{71}$ 、 $X_{72}$ 、 $X_{73}$ はC-R<sub>d</sub>またはNを表し、 $X_{71}$ 、 $X_{72}$ 、 $X_{73}$ の少なくとも一つはNを表す。R<sub>c</sub>、R<sub>d</sub>は各々独立して、水素原子または置換基を表す。R<sub>61</sub>、R<sub>62</sub>、R<sub>71</sub>、R<sub>72</sub>は置換基を表す。\*はベンゼン環との結合部位を表す。R<sub>c</sub>、R<sub>d</sub>、R<sub>61</sub>、R<sub>62</sub>、R<sub>71</sub>、R<sub>72</sub>が置換基を表す場合の置換基は、一般式(D1-1)～(D1-4)で示した置換基と同義である。

40

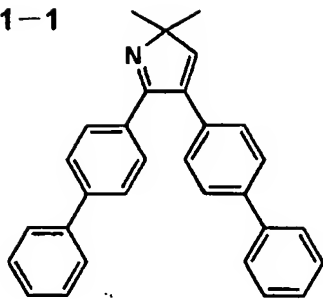
【0813】

一般式(D1-1)～(D1-6)で表される化合物の具体例を以下に示す。

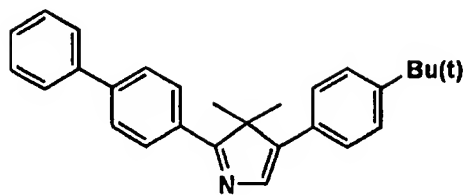
【0814】

【化485】

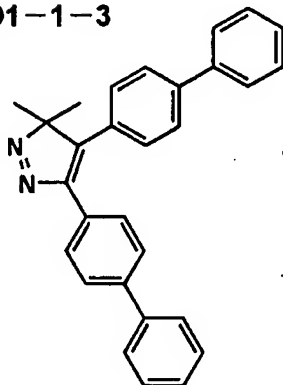
D1-1-1



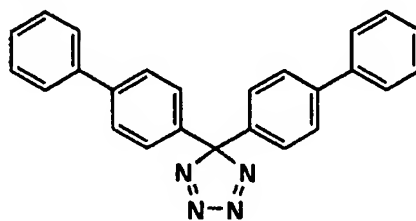
D1-1-2



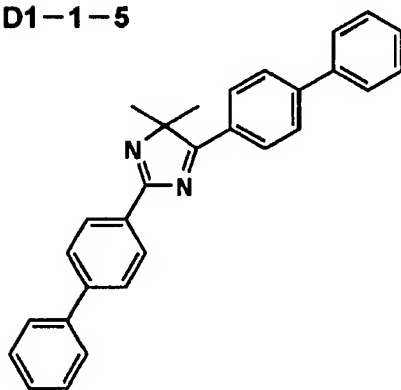
D1-1-3



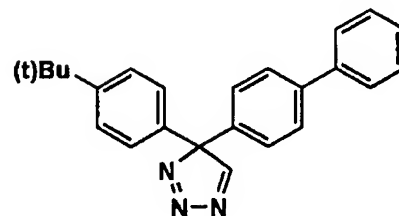
D1-1-4



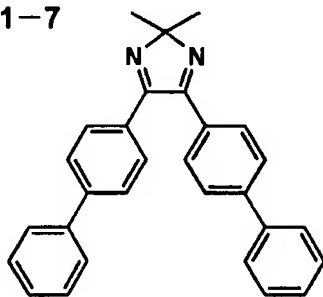
D1-1-5



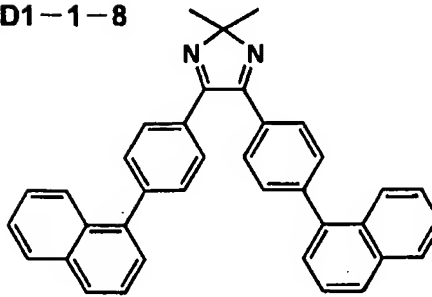
D1-1-6



D1-1-7



D1-1-8



【 0 8 1 5 】

【 化 4 8 6 】

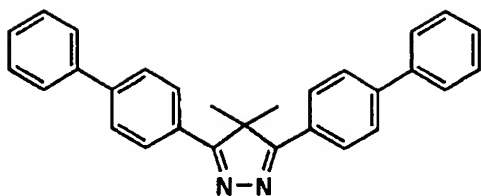
10

20

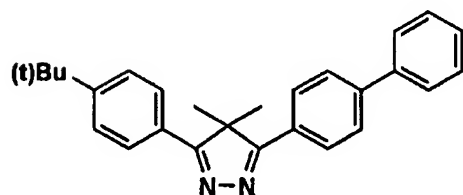
30

40

D1-2-1

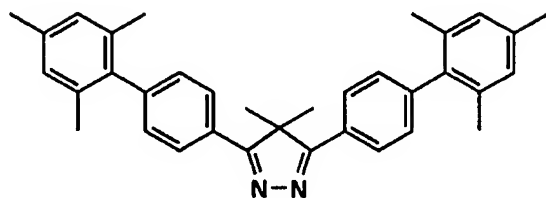


D1-2-2



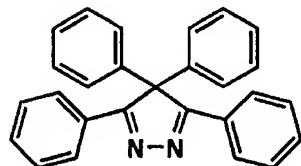
10

D1-2-3



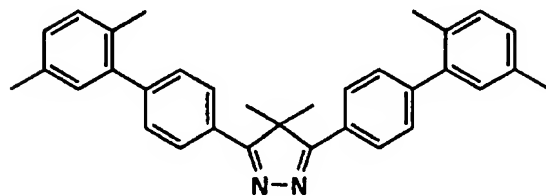
20

D1-2-4



30

D1-2-5

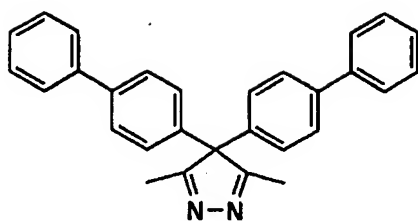


40

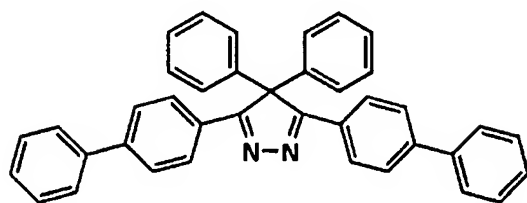
【 0 8 1 6 】

【 化 4 8 7 】

D1-2-6

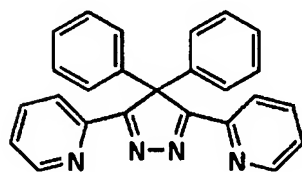


D1-2-7



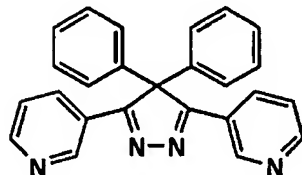
10

D1-2-8



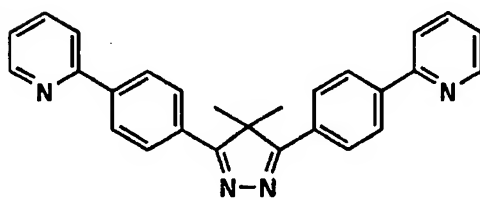
20

D1-2-9



30

D1-2-10

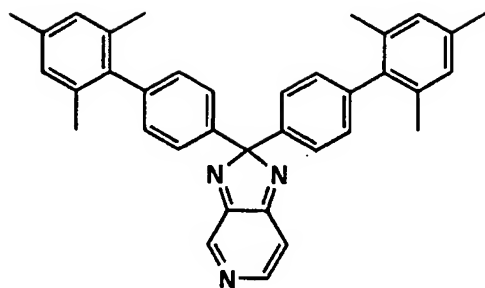


40

【 0 8 1 7 】

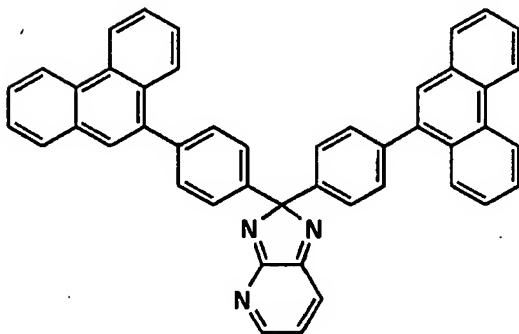
【 化 4 8 8 】

D1-3-1



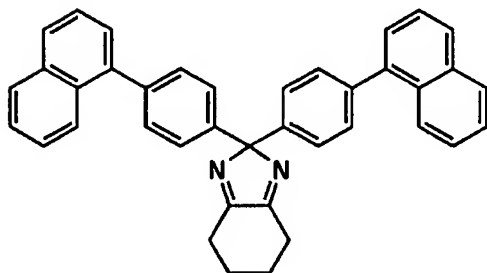
10

D1-3-2



20

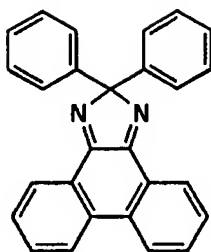
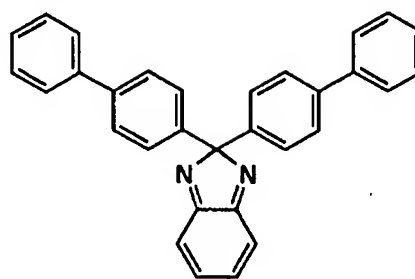
D1-3-3



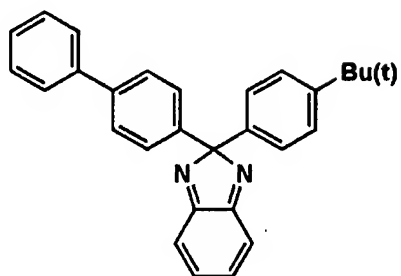
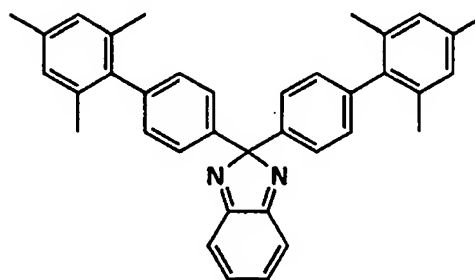
30

【 0 8 1 8 】

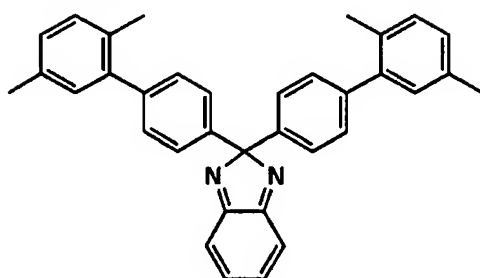
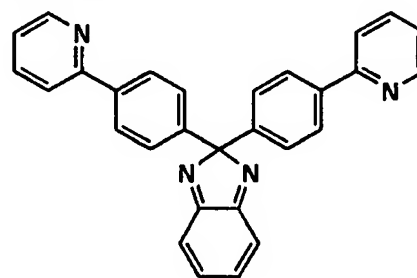
【 化 4 8 9 】

**D1-4-1****D1-4-2**

10

**D1-4-3****D1-4-4**

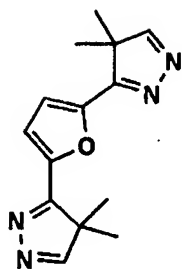
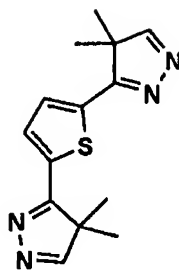
20

**D1-4-5****D1-4-6**

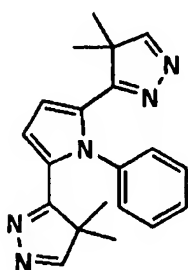
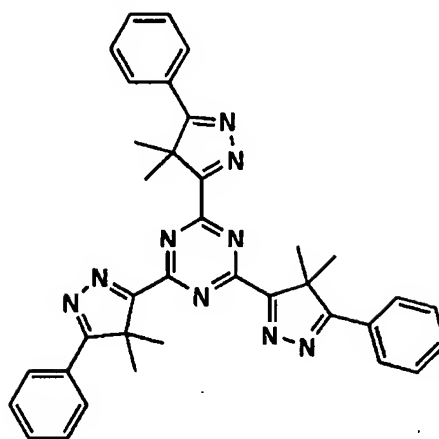
30

【 0 8 1 9 】

【 化 4 9 0 】

**D1-5-1****D1-5-2**

10

**D1-5-3****D1-5-4**

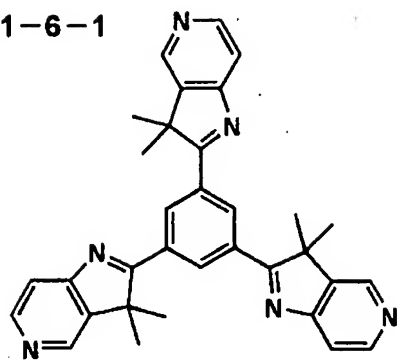
20

【 0 8 2 0 】

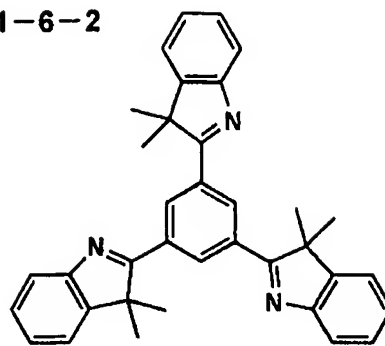
【 化 4 9 1 】

30

D1-6-1

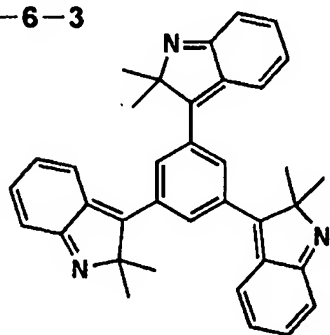


D1-6-2



10

D1-6-3



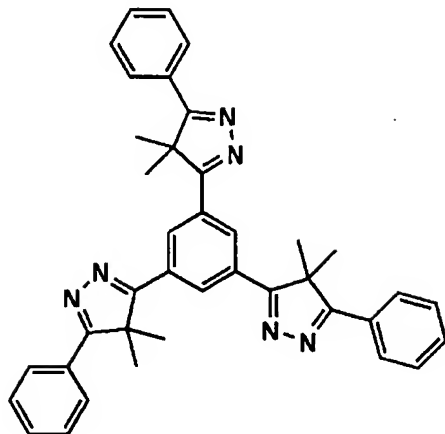
20

【 0 8 2 1 】

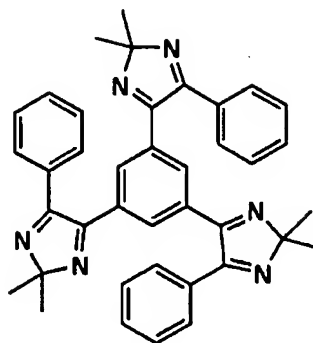
【 化 4 9 2 】



D1-7-1

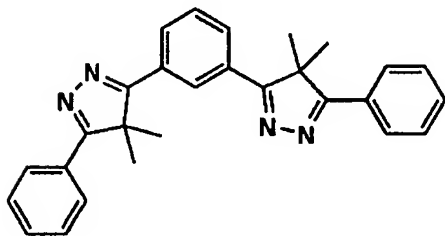


D1-7-2

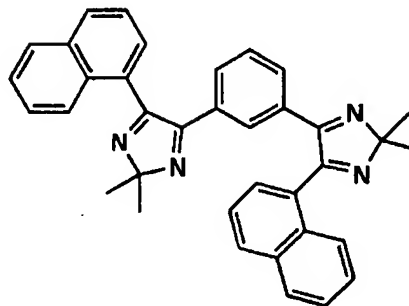


10

D1-7-3



D1-7-4



20

## 【0822】

これらの化合物の代表的製造例を以下に示す。その他の化合物についても同様の方法により製造することができる。

## 【0823】

(合成例) 化合物(D1-2-1)の合成

化合物(2) 40 g と NaH 17 g を窒素気流下で、脱水トルエン 300 ml に溶解し 60 度に保った。この溶液に、化合物(1) 37 g を脱水トルエン 100 ml に溶解したものを滴下し、8 時間加熱還流をした。その後、反応液に水を徐々に添加し、濃硫酸で中和した。酢酸エチルとテトラヒドロフランと水で分液後、有機層を抽出し、硫酸ナトリウムで乾燥させた。溶媒を減圧留去してから、トルエンで再結晶すると、化合物(3) 20 g を得た。

40

## 【0824】

化合物(3) 20 g をアセトン 250 ml に溶解して、炭酸カリウム 29 g、ヨードメタン 30 g を加え、1.5 日間室温で攪拌した。アセトンを減圧留去後、反応液を中和した。酢酸エチルとテトラヒドロフランと水を添加後、有機層を抽出し、硫酸ナトリウムで乾燥させた。酢酸エチル：ヘキサンが 1：15 の溶離液でカラム精製し、化合物(4) 9.7 g を得た。

## 【0825】

化合物(4) 5 g とヒドラジン・水和物 0.8 g をジクロロエタンに溶解し、7 時間加熱還流し、化合物(5) 3.5 g を得た。

## 【0826】

50

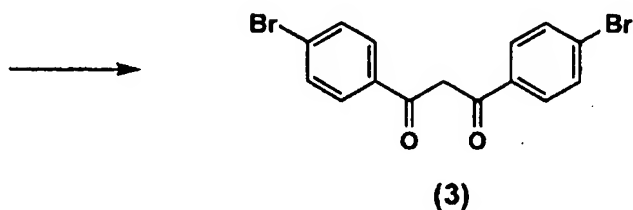
化合物 (5) 3 g をテトラヒドロフラン 60 ml - 水 5 ml からなる 2 層系の溶媒中、炭酸カリウム、パラジウム触媒の存在下、1.3 g のフェニルボロン酸と反応させることで 2.0 g の化合物 (D1-2-1) を得た。NMR (核磁気共鳴スペクトル) 及びマススペクトルにより目的物であることを確認した。

【0827】

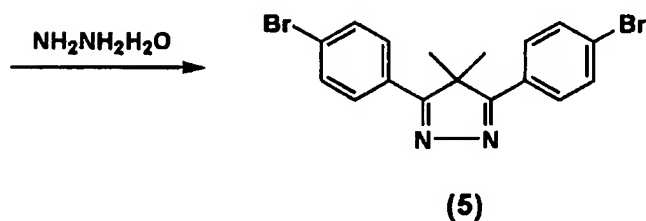
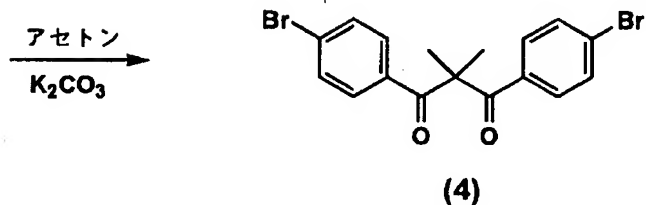
【化493】



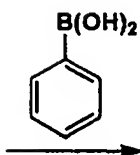
10



20



30



40

**D1-2-1**

【0828】

一般式 (D2-1) ~ (D2-3) で表される化合物について説明する。

【0829】

前記一般式 (D2-1) ~ (D2-3) において、 $Z_1 \sim Z_3$  は各々非共役な 7 員環を形成するに必要な原子群を表す。 $Z_1 \sim Z_3$  は各々置換基を有していても良い。 $X_{1,1} \sim X_{1,4}$  は各々 C-Ra 又は窒素原子を表す。又、一般式 (D2-1) ~ (D2-3) にお

50

いて、 $R_a$ 、 $R_{11} \sim R_{14}$  は各々独立して、水素原子又は置換基を表す。 $R_a$ 、 $R_{11} \sim R_{14}$  が各々置換基を表す場合、その置換基としては、アルキル基（例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロ- $n$ -ブチル基、パーフルオロ- $t$ -ブチル基、 $t$ -ブチル基等）、シクロアルキル基（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アラルキル基（例えば、ベンジル基、2-フェネチル基等）、アリール基（例えば、フェニル基、ナフチル基、 $p$ -トリル基、 $p$ -クロロフェニル基等）、アルコキシ基（例えば、エトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等）、アリールオキシ基（例えば、フェノキシ基等）、シアノ基、水酸基、ハロゲン原子（例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等）等が挙げられる。これらの基は、更に置換されていてもよい。

10

## 【0830】

前記一般式（D2-3）において、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$  は、各々 $\sigma_p$ が-0.5以上、0.0以下の置換基である。

## 【0831】

本発明において、置換基の $\sigma_p$ 値が-0.5以上、0.0以下の置換基の代表例としては、メチル基、エチル基、シクロプロピル基、 $n$ -プロピル基、 $iso$ -プロピル基、シクロブチル基、 $n$ -ブチル基、 $iso$ -ブチル基、 $n$ -ペンチル基、シクロヘキシル基、ヒドロキシル基、アルキルオキシ基（例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ドデシルオキシ基、ベンジルオキシ基）等が挙げられる。

20

## 【0832】

$\sigma_p$ 値は、Hammett等によって安息香酸エステルの加水分解に及ぼす置換基の電子的効果から求められた置換基定数であり、ジャーナル・オブ・オーガニック・ケミストリー23巻、420～427頁（1958）、実験化学講座14巻（丸善出版社）、フィジカル・オーガニック・ケミストリー（McGrawHill Book社：1940）、ドラッグデザインVII巻（Academic Press New York：1976）、薬物の構造活性相関（南江堂：1979）、ジャーナル・オブ・メディカルケミストリー（Journal of Medical Chemistry）第20巻、304頁、1977年、記載のC. ハンシュ（C. Hansch）等に詳しく記載されている。

## 【0833】

次いで、請求項4～6に係る一般式（D2-4）～（D2-6）で表される化合物について説明する。

30

## 【0834】

前記一般式（D2-4）において、 $X_{21} \sim X_{24}$  は各々C-Rb又は窒素原子を表す。又、一般式（D2-4）～（D2-6）において、 $R_b$ 、 $R_{31} \sim R_{34}$ 、 $R_{41} \sim R_{48}$ 、 $R_{53} \sim R_{56}$  は、各々独立して、水素原子又は置換基を表す。 $R_b$ 、 $R_{31} \sim R_{34}$ 、 $R_{41} \sim R_{48}$ 、 $R_{53} \sim R_{56}$  が、各々置換基を表す場合、その置換基としては、前述の一般式（D2-1）～（D2-3）で示した置換基と同義である。

## 【0835】

前記一般式（D2-6）において、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$  は、各々 $\sigma_p$ が-0.5以上、0.0以下の置換基である。具体的には、前述の一般式（D2-3）における $R_{21}$ 、 $R_{22}$  と同義である。

40

## 【0836】

前記一般式（D2-4）～（D2-6）において、好ましくは、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{45}$ 、 $R_{46}$ 、 $R_{53}$ 、 $R_{54}$  が各々アリール基である場合が好ましい。

## 【0837】

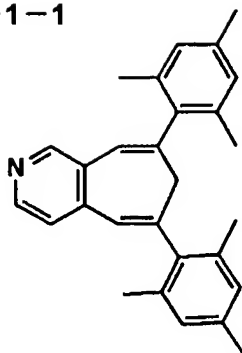
以下に、前記一般式（D2-1）～（D2-6）で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

## 【0838】

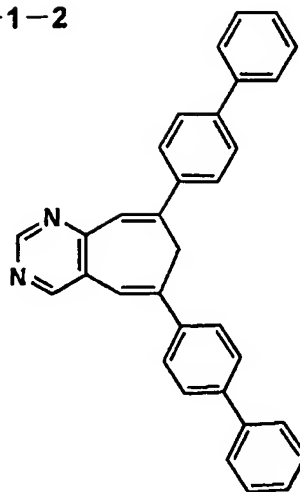
## 【化494】

50

D2-1-1

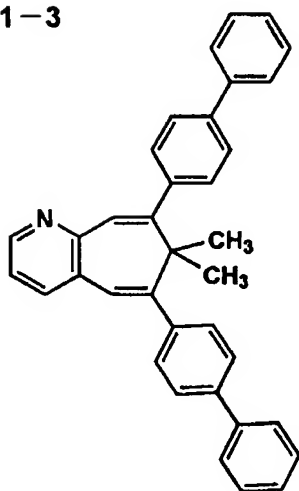


D2-1-2

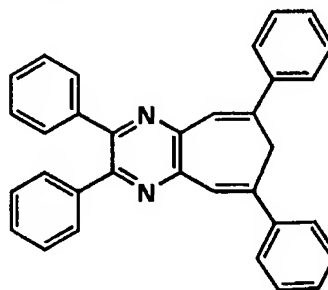


10

D2-1-3

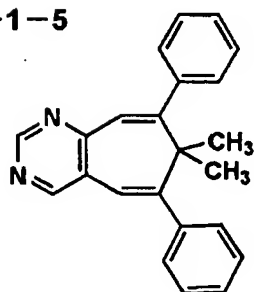


D2-1-4



20

D2-1-5

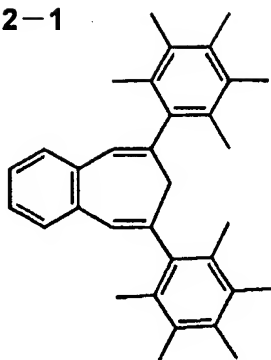
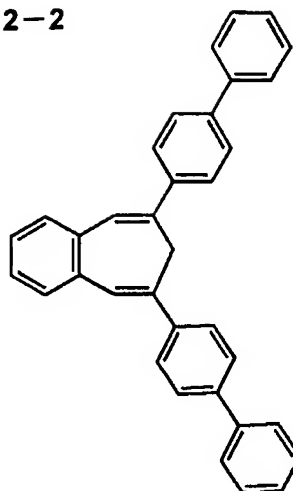


30

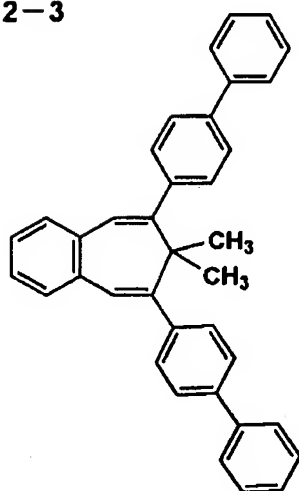
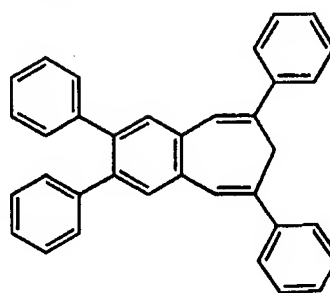
40

【 0 8 3 9 】

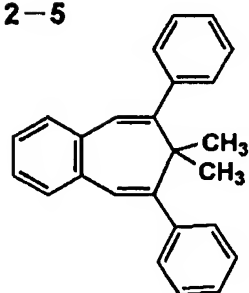
【 化 4 9 5 】

**D2-2-1****D2-2-2**

10

**D2-2-3****D2-2-4**

20

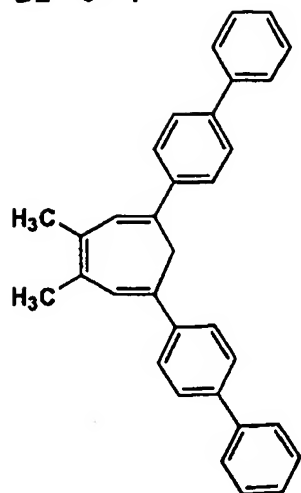
**D2-2-5**

40

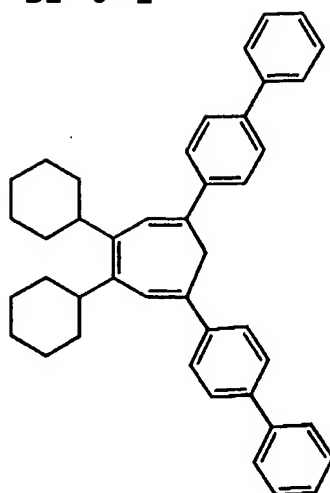
【 0 8 4 0 】

【 化 4 9 6 】

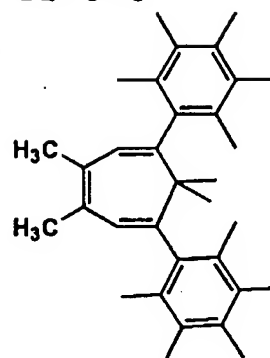
D2-3-1



D2-3-2

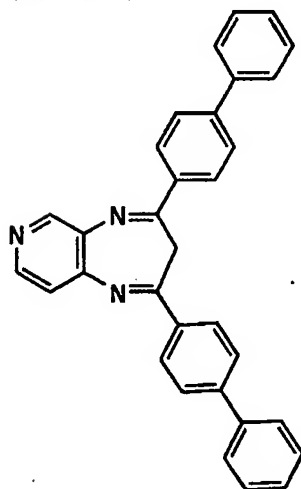


D2-3-3

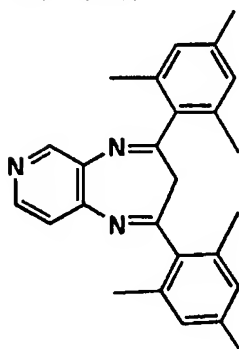


10

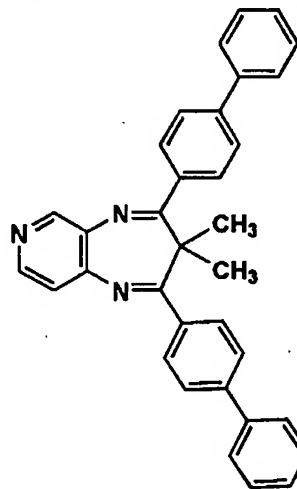
D2-4-1



D2-4-2



D2-4-3



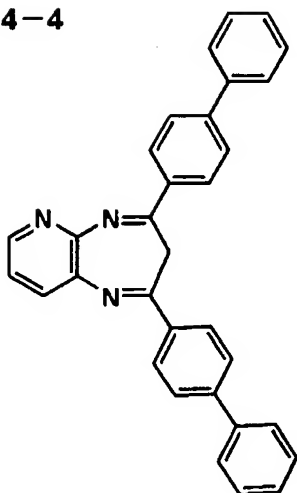
20

30

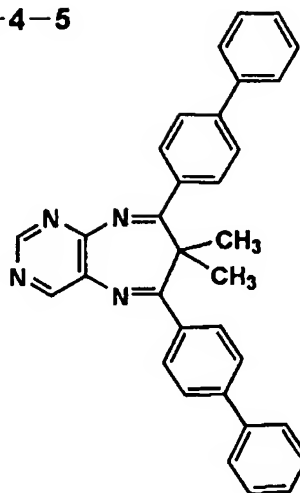
【 0 8 4 1 】

【 化 4 9 7 】

D2-4-4

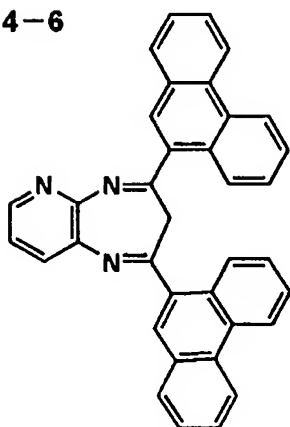


D2-4-5

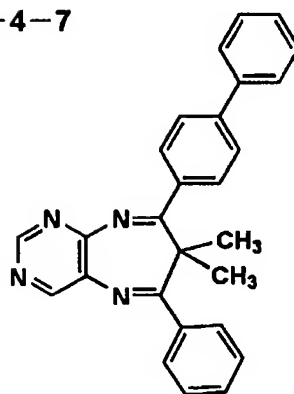


10

D2-4-6

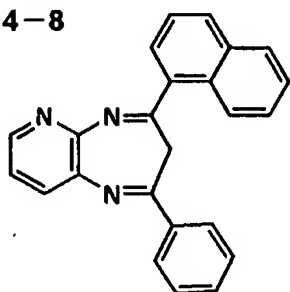


D2-4-7

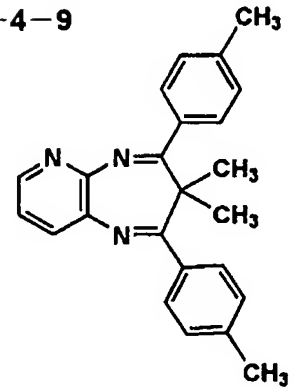


20

D2-4-8



D2-4-9



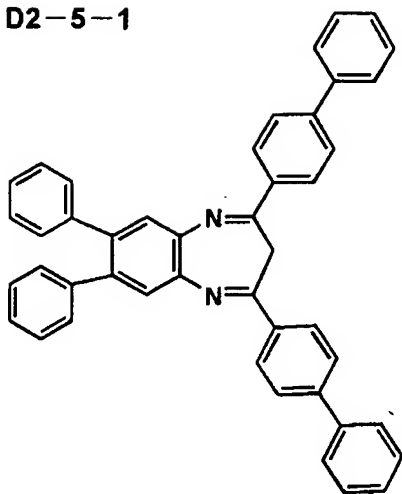
30

40

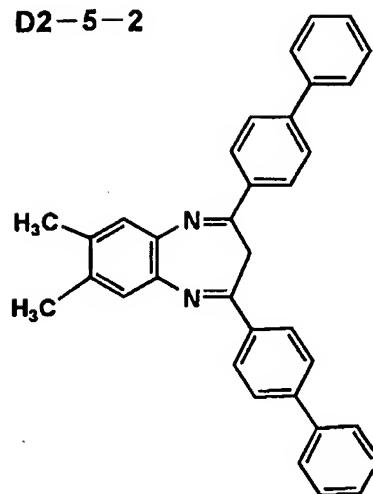
【 0 8 4 2 】

【 化 4 9 8 】

D2-5-1

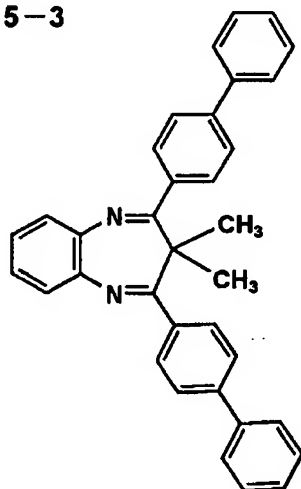


D2-5-2

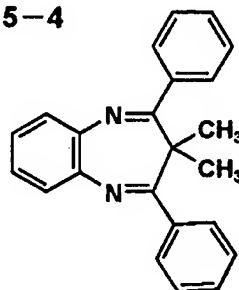


10

D2-5-3

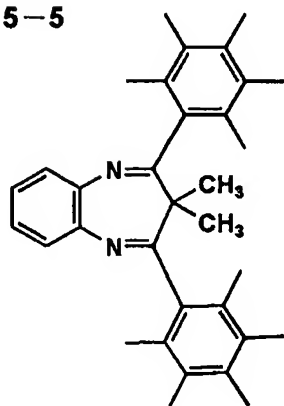


D2-5-4

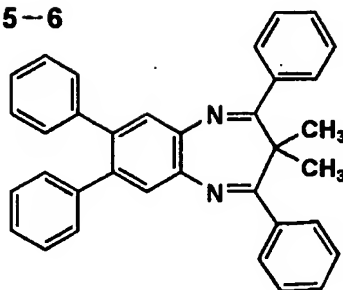


20

D2-5-5



D2-5-6

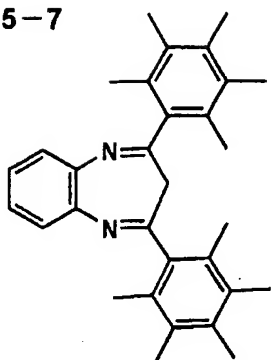


40

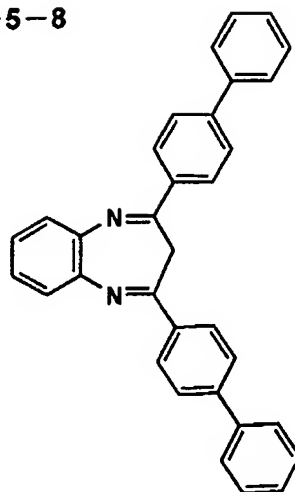
【 0 8 4 3 】  
【 化 4 9 9 】



D2-5-7

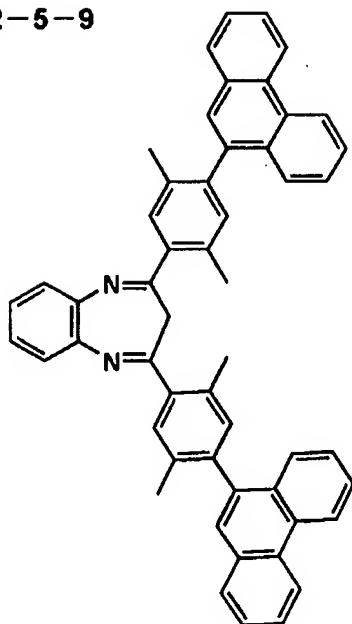


D2-5-8

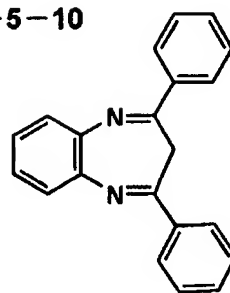


10

D2-5-9

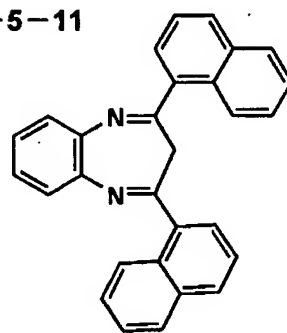


D2-5-10



20

D2-5-11

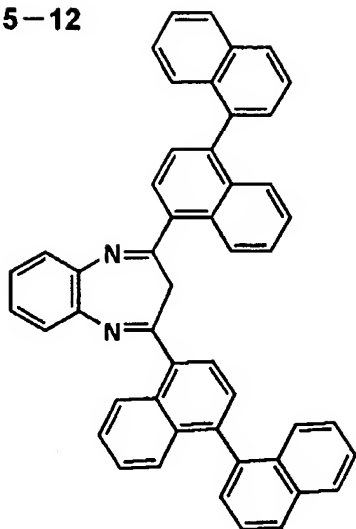


30

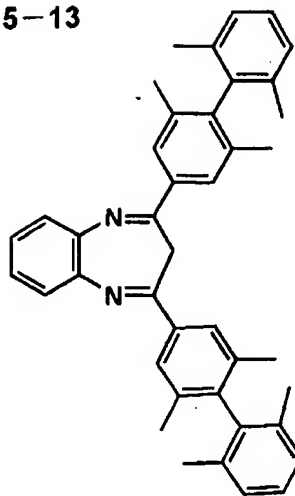
【 0 8 4 4 】

【 化 5 0 0 】

D2-5-12



D2-5-13



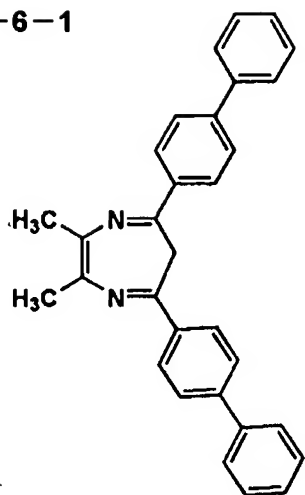
10

【 0 8 4 5 】

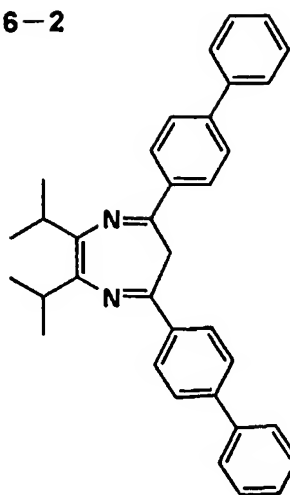
【 化 5 0 1 】

20

D2-6-1

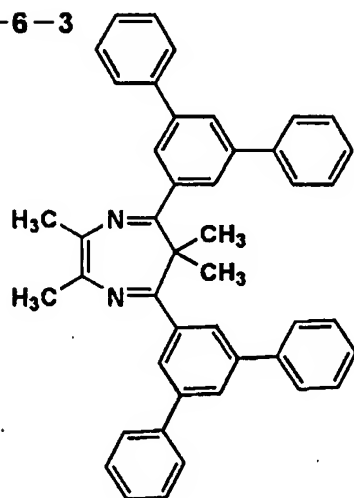


D2-6-2

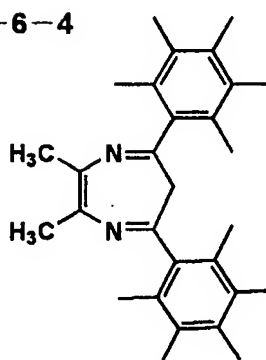


10

D2-6-3



D2-6-4



20

30

## 【0846】

本発明に係る上記化合物の代表的製造例を以下に示す。その他の化合物についても同様の方法により製造することができる。

## 【0847】

(合成例：例示化合物 D2-5-8 の合成)

化合物 (2) の 40 g と NaH の 17 g とを窒素気流下で、脱水トルエン 300 ml に溶解し 60 度に保った。この溶液に、化合物 (1) の 37 g を脱水トルエン 100 ml に溶解したものを滴下した。滴下終了後、一昼夜攪拌をした。その後、反応液に濃硫酸を添加して中和した後、酢酸エチルと水で分液した。有機層を抽出し、硫酸ナトリウムで乾燥させた。溶媒を減圧留去してから、トルエンで再結晶して、化合物 (3) を 20 g 得た。

40

## 【0848】

化合物 (3) の 15 g と化合物 (4) の 5 g とをエタノール 200 ml、酢酸 10 ml の溶液に溶解し、4 時間加熱攪拌した。反応液を冷やしてから、濃塩酸を 10 ml 添加した。一昼夜冷蔵庫に保管した後、生成した沈殿物をろ過して化合物 (5) を 8 g 得た。

## 【0849】

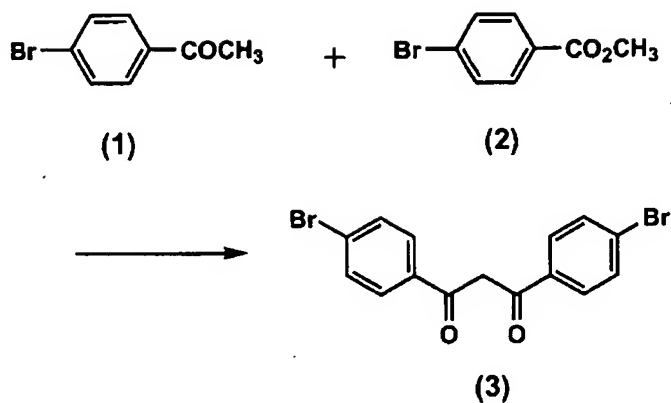
化合物 (5) の 5 g を、テトラヒドロフラン 60 ml - 水 5 ml からなる 2 層系の溶媒中で、炭酸カリウム、パラジウム触媒の存在下、3.5 g のフェニルボロン酸 (6) と反応させることで、3.1 g の例示化合物 D2-5-8 を得た。NMR (核磁気共鳴スペクト

50

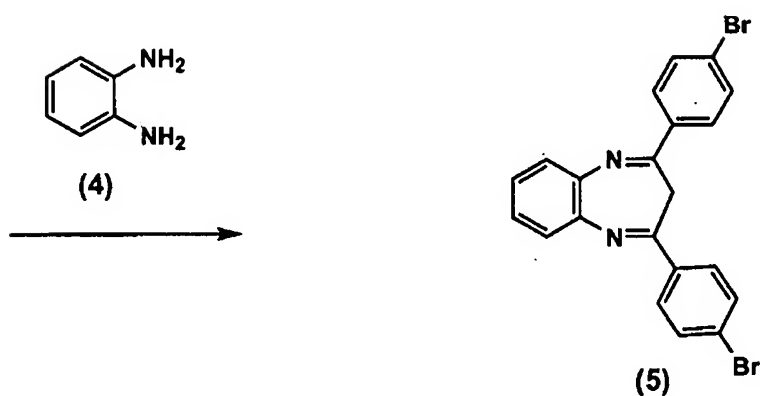
ル) 及びマススペクトルにより目的物であることを確認した。

【0850】

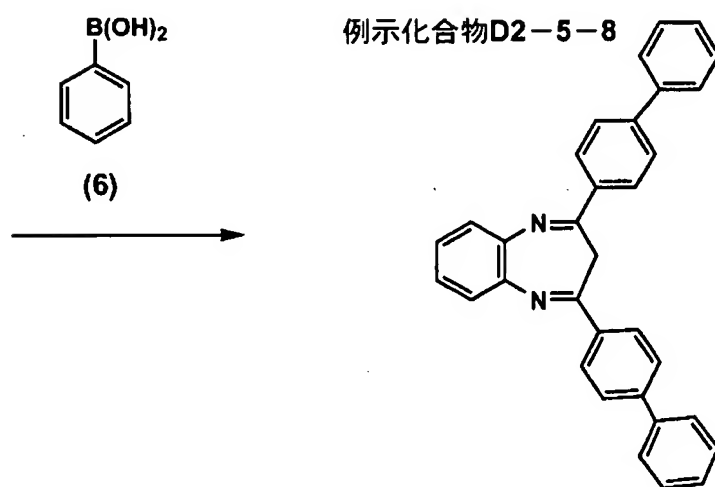
【化502】



10



20



30

40

【0851】

一般式 (D3-1) ~ (D3-6) で表される化合物について説明する。

【0852】

一般式 (D3-1) において、式中、 $A_1$  と  $A_2$  は一般式 (A) から (G) で表される部分構造から選ばれる基であり、同一でも異なっても良い。 $B_0$  は炭素原子数を少なくとも7個以上有する二価の連結基である。一般式 (A) において、 $B_1$  と  $B_2$  の中のい

50

れか一つが、 $B_0$ に相当し、その他は一価の置換基である。 $n_1$ は0から4の整数である。一般式(B)において、 $B_3$ と $B_4$ の中のいずれか一つが、 $B_0$ に相当し、その他は一価の置換基である。 $n_2$ は0から3の整数である。一般式(C)において、 $B_5$ と $B_6$ の中のいずれか一つが、 $B_0$ に相当し、その他は一価の置換基である。 $n_3$ は0から3の整数である。一般式(D)において、 $B_7$ と $B_8$ の中のいずれか一つが、 $B_0$ に相当し、その他は一価の置換基である。 $n_4$ は0から2の整数である。一般式(E)において、 $B_9$ と $B_{10}$ の中のいずれか一つが、 $B_0$ に相当し、その他は一価の置換基である。 $n_5$ は0から2の整数である。一般式(F)において、 $B_{11}$ と $B_{12}$ の中のいずれか一方が、 $B_0$ に相当し、一方は一価の置換基である。一般式(G)において、 $B_{13}$ と $B_{14}$ の中のいずれか一方が、 $B_0$ に相当し、一方は一価の置換基である。なお、一般式(A)～(E) 10

【0853】

一般式(A)～(G)において、 $B_0$ であることが好ましいのは、それぞれ $B_2$ 、 $B_4$ 、 $B_6$ 、 $B_8$ 、 $B_{10}$ 、 $B_{12}$ 、 $B_{14}$ である。

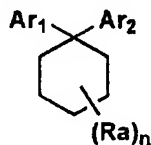
【0854】

本発明の一般式(D3-1)～(D3-6)で表される化合物について説明する。式中、 $X_{11}$ 、 $X_{12}$ 、 $X_{13}$ 、 $X_{14}$ 、 $X_{15}$ は二価の基を表し、 $X_{11}$ 、 $X_{12}$ は炭素原子を少なくとも13個以上有する。又、 $X_{13}$ 、 $X_{14}$ 、 $X_{15}$ も炭素原子を少なくとも13個以上有するものが好ましい。具体的には、アルキレン基、アリーレン基、複素アリーレン基、酸素原子、硫黄原子、及びこれらの組み合わせ等が挙げられる。好ましくは、ア 20

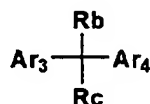
【0855】

【化503】

連結基(i)



連結基(ii)



30

【0856】

連結基(i)、(ii)において、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 、 $Ar_3$ 、 $Ar_4$ はアリーレン基を表す。 $Ra$ 、 $Rb$ 、 $Rc$ はアルキル基を表す。 $n$ は0～10の整数を表す。連結基(i)、(ii)において、連結する部位は $Ar_1$ 、 $Ar_2$ 及び $Ar_3$ 、 $Ar_4$ である。

【0857】

又、一般式(D3-1)～(D3-6)において、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$ 、 $R_{18}$ 、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$ 、 $R_{25}$ 、 $R_{26}$ 、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{33}$ 、 $R_{34}$ 、 $R_{35}$ 、 $R_{36}$ 、 $R_{41}$ 、 $R_{42}$ 、 $R_{43}$ 、 $R_{44}$ 、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ 、 $R_{53}$ 又は $R_{54}$ は、各々独立して、水素原子、又は置換基を表す。 40

【0858】

ただし、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$ 、 $R_{18}$ はそれぞれ互いに縮合して環を形成することはない。以下同様に、 $R_{21}$ ～ $R_{26}$ 、 $R_{31}$ ～ $R_{36}$ 、 $R_{41}$ ～ $R_{44}$ 、及び $R_{51}$ ～ $R_{54}$ もそれぞれ互いに縮合して環を形成することはない。

【0859】

$R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$ 、 $R_{18}$ 、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$ 、 $R_{25}$ 、 $R_{26}$ 、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{33}$ 、 $R_{34}$ 、 $R_{35}$ 、 $R_{36}$ 、 $R_{41}$ 、 $R_{42}$ 、 $R_{43}$ 、 $R_{44}$ 、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ 、 $R_{53}$ 又は $R_{54}$ が、置換基を表す 50

場合、その置換基としては、アルキル基（例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロ-*n*-ブチル基、パーフルオロ-*t*-ブチル基、*t*-ブチル基等）、シクロアルキル基（例えばシクロペンチル基、シクロヘキシル基等）、アラルキル基（例えばベンジル基、2-フェネチル基等）、アリール基（例えばフェニル基、ナフチル基、*p*-トリル基、*p*-クロロフェニル基等）、アルコキシ基（例えばエトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等）、アリールオキシ基（例えばフェノキシ基等）、シアノ基、水酸基、ハロゲン原子（フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等）等が挙げられる。これらの基はさらに置換されていてもよい。

【0860】

10

一般式（D3-2）において、 $R_{11}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{18}$ のうち少なくとも二つはアリール基である場合が好ましい。また、一般式（3）において、 $R_{21}$ 、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$ 、 $R_{26}$ のうち少なくとも二つはアリール基である場合が好ましい。

【0861】

$R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$ 、 $R_{18}$ 、 $R_{21}$ 、 $R_{22}$ 、 $R_{23}$ 、 $R_{24}$ 、 $R_{25}$ 、 $R_{26}$ 、 $R_{31}$ 、 $R_{32}$ 、 $R_{33}$ 、 $R_{34}$ 、 $R_{35}$ 、 $R_{36}$ 、 $R_{41}$ 、 $R_{42}$ 、 $R_{43}$ 、 $R_{44}$ 、 $R_{51}$ 、 $R_{52}$ 、 $R_{53}$  又は  $R_{54}$  が置換基を表す場合、好ましくは、アルキル基、又はアリール基である。

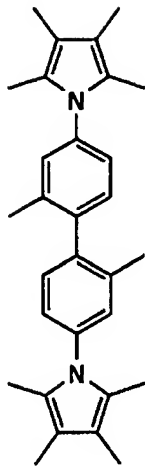
【0862】

以下に、本発明の一般式（D3-1）～（D3-6）で表される化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。 20

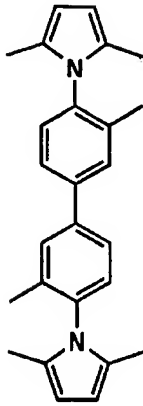
【0863】

【化504】

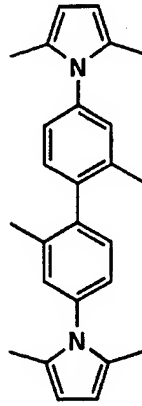
D3-1-1



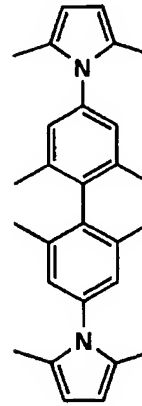
D3-1-2



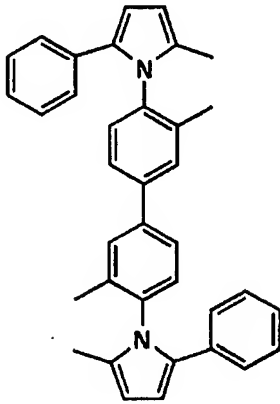
D3-1-3



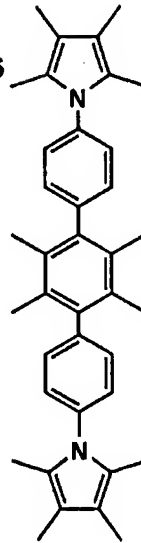
D3-1-4



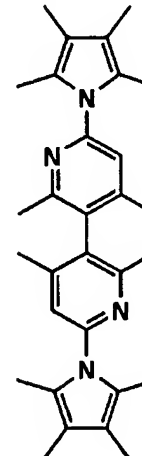
D3-1-5



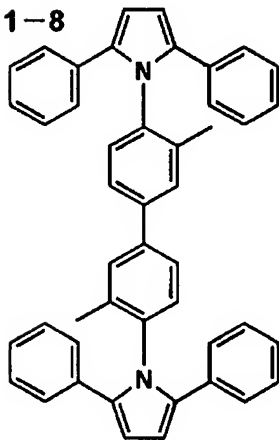
D3-1-6



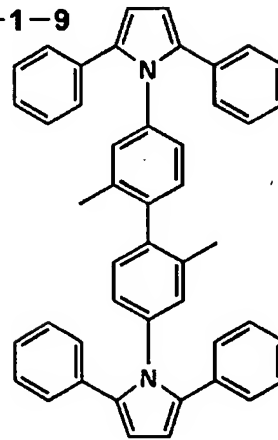
D3-1-7



D3-1-8

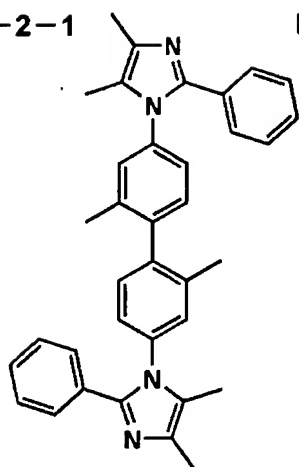


D3-1-9

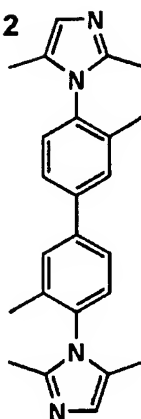


[ 0 8 6 4 ]  
[ 化 5 0 5 ]

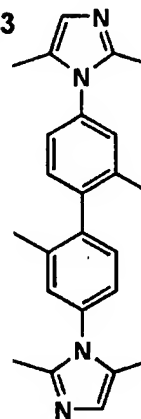
D3-2-1



D3-2-2

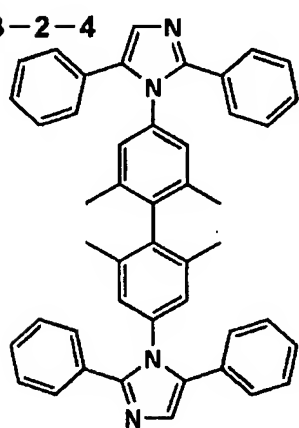


D3-2-3

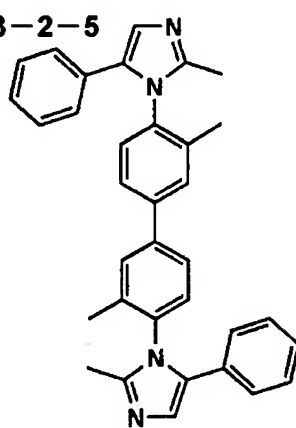


10

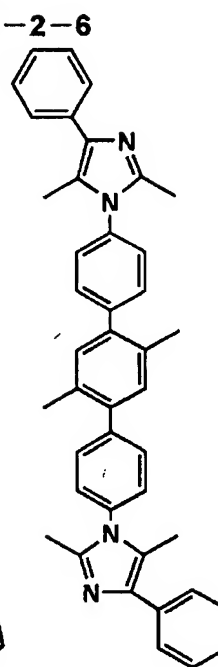
D3-2-4



D3-2-5

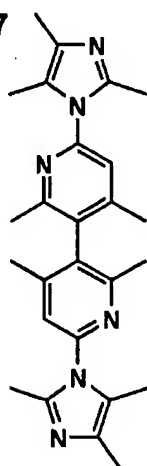


D3-2-6

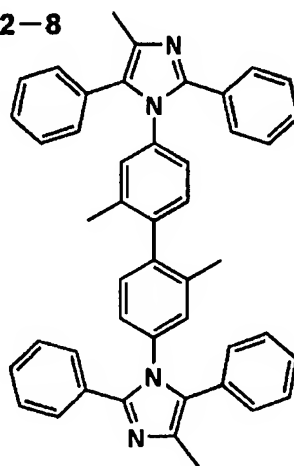


20

D3-2-7



D3-2-8



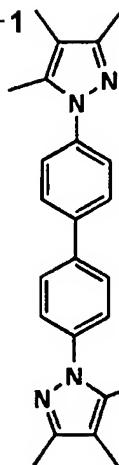
30

40

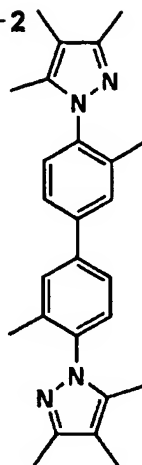
【 0 8 6 5 】  
【 化 5 0 6 】



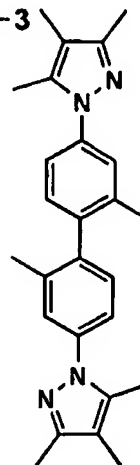
D3-3-1



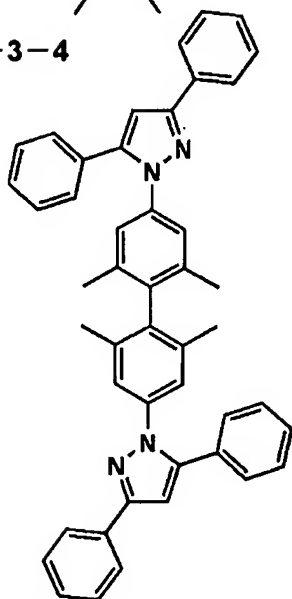
D3-3-2



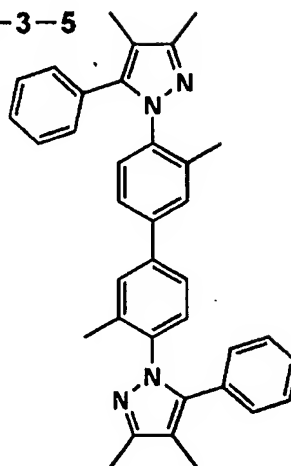
D3-3-3



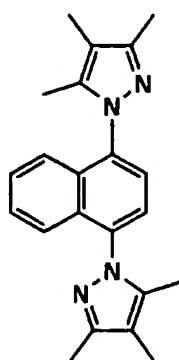
D3-3-4



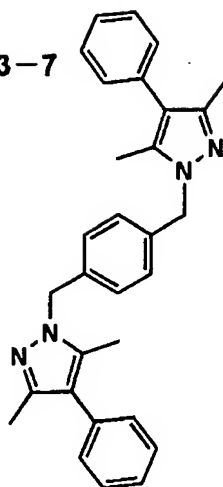
D3-3-5



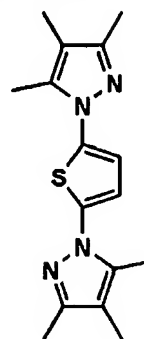
D3-3-6



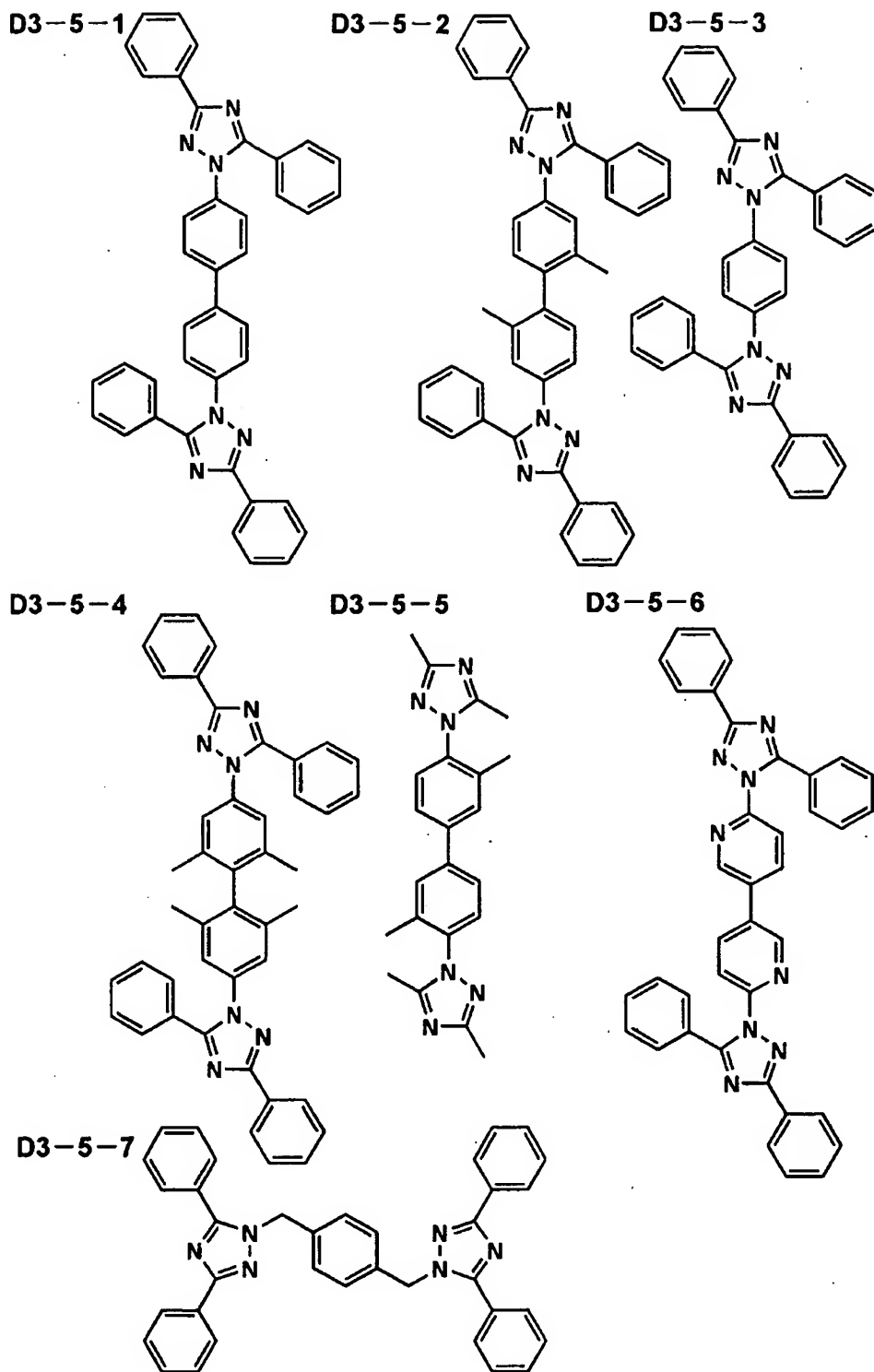
D3-3-7



D3-3-8



[ 0 8 6 6 ]  
[ 化 5 0 7 ]



10

20

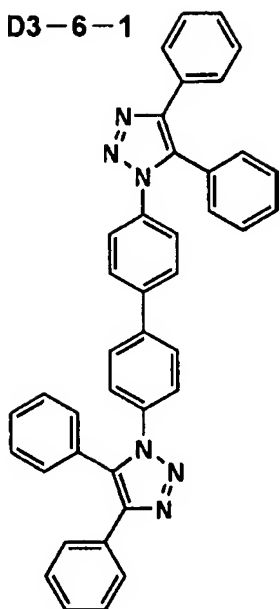
30

40

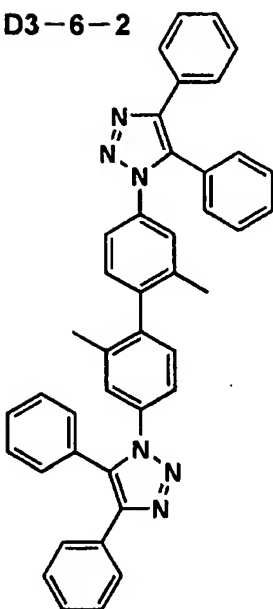
【 0 8 6 7 】

【 化 5 0 8 】

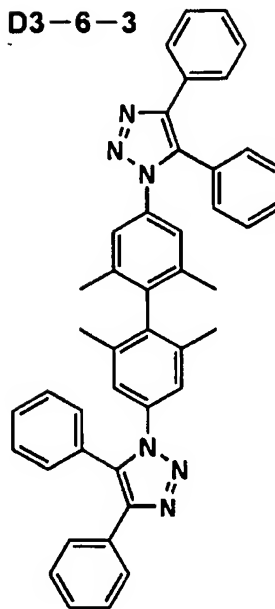
D3-6-1



D3-6-2

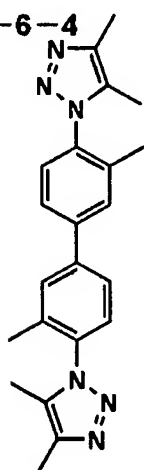


D3-6-3

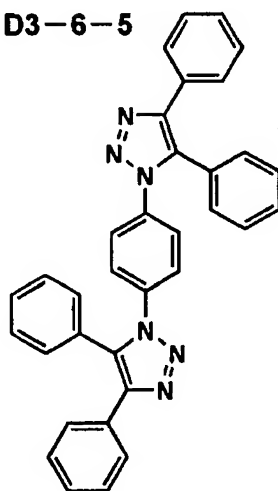


10

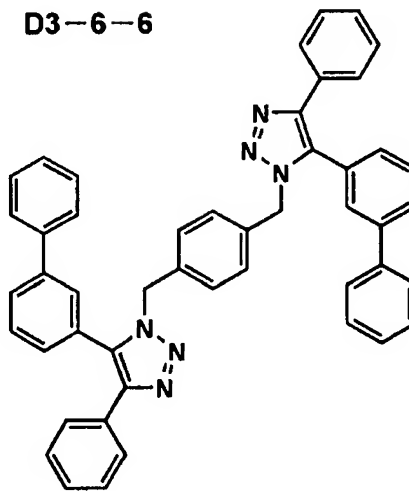
D3-6-4



D3-6-5



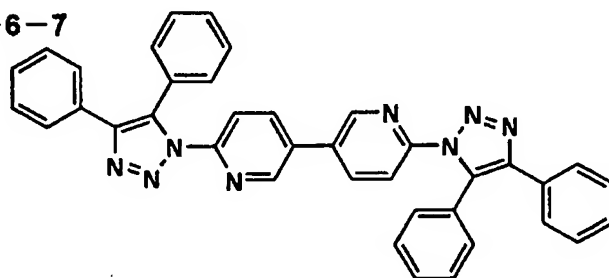
D3-6-6



20

30

D3-6-7

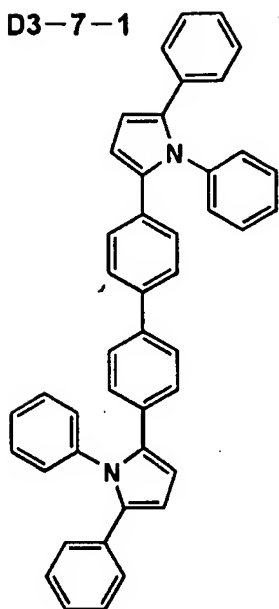


40

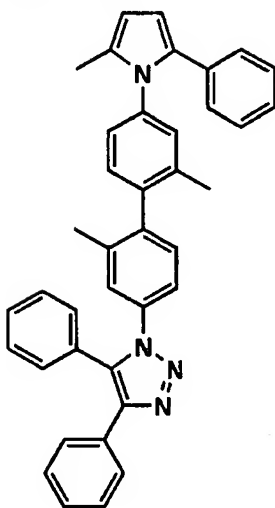
[ 0 8 6 8 ]

[ 化 5 0 9 ]

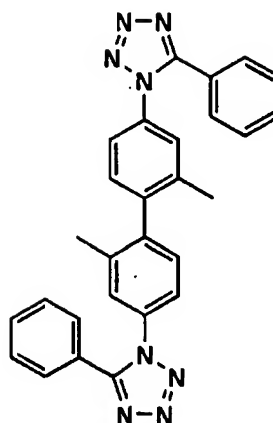
D3-7-1



D3-7-2

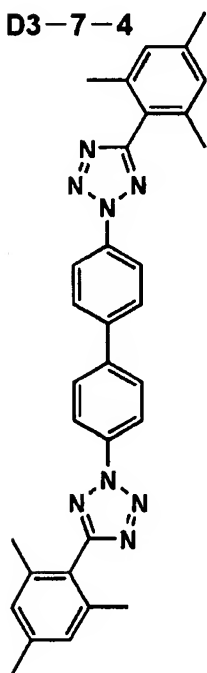


D3-7-3

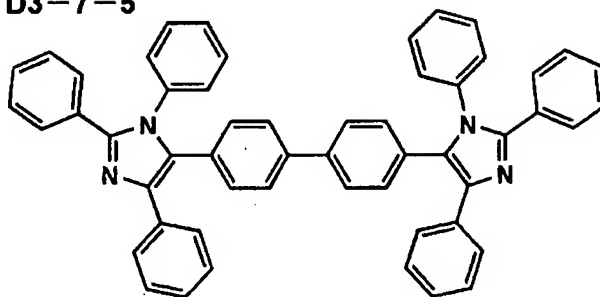


10

D3-7-4

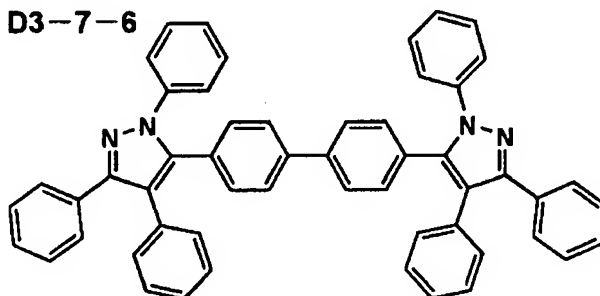


D3-7-5



20

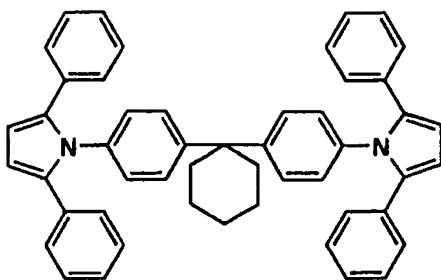
D3-7-6



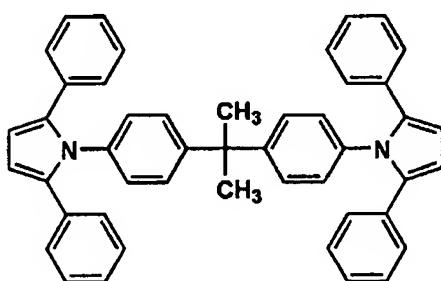
30

40

D3-8-1

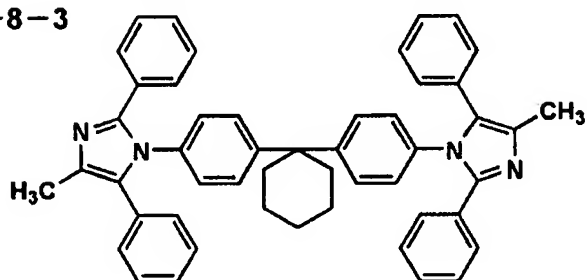


D3-8-2



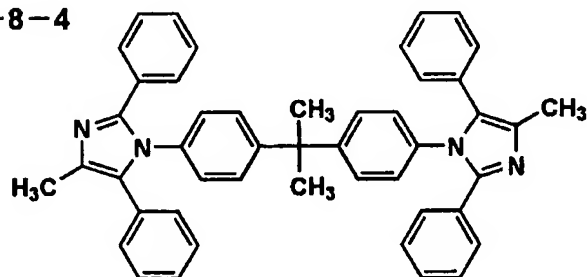
10

D3-8-3



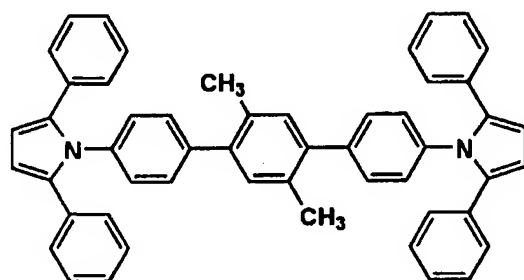
20

D3-8-4



30

D3-8-5



40

## 【0870】

本発明の化合物の代表的製造例を以下に示す。その他の化合物についても同様の方法により製造することができる。

## 【0871】

(合成例) 化合物(D3-1-2)の合成

オルトリジン 5.0 g と 2,5-ヘキサジオン 5.0 g を酢酸 50 ml に溶解し 3 時間 50

加熱攪拌した。反応終了後、反応液に、酢酸エチル、水を加えて有機層を抽出した。硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒を減圧留去してからカラムクロマトグラフィーで精製した後、アセトニトリルで再結晶し、化合物(D3-1-2)を6.9 g得た(収率80%)。

【0872】

NMRスペクトル、マススペクトルにより化合物(D3-1-2)であることを確認した。

【0873】

(合成例) 化合物(D3-1-8)の合成

合成例1において、2, 5ヘキサンジオンを1, 2ジベンゾイルエタンに変更した以外は、合成例1にのっとって化合物(1-8)を合成した。

【0874】

NMRスペクトル、マススペクトルにより化合物(1-8)であることを確認した。

【0875】

(合成例) 化合物(D3-8-1)の合成

シクロヘキサノン20 gとアニリン38 gを濃塩酸中で40時間加熱還流した。反応液を中和後、反応液に、酢酸エチル、水を加えて有機層を抽出した。硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒を減圧留去してからカラムクロマトグラフィーで精製しアミン化合物を31 g得た。該アミン化合物と1, 2ジベンゾイルエタンを合成例2にのっとって合成し化合物(D3-8-1)を得た。

【0876】

NMRスペクトル、マススペクトルにより化合物(D3-8-1)であることを確認した。

【0877】

以下に、本発明の一般式(E1-1)、(E1-5)で表される化合物について詳しく説明する。

【0878】

前記一般式(E1-1)中、 $X_1 \sim X_{12}$ は水素原子又は置換基を表し各々異なっても同一でも良く、 $X_1$ 、 $X_4$ 、 $X_5$ 、 $X_8$ 、 $X_9$ 及び $X_{12}$ のうち少なくとも一つは置換基を表す。置換基として好ましくは、アルキル基(メチル、エチル、i-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、t-ブチル等)、ハロゲン原子(フッ素、塩素等)、アルコキシ基(メトキシ、エトキシ、i-プロポキシ、ブトキシ等)が挙げられる。 $A_1 \sim A_3$ は置換又は無置換の芳香族炭化水素基を表し、各々異なっても同一でも良く、好ましくはフェニル、ビフェニル、ナフチル、ピナフチル、フェナンスリル等を表す。

【0879】

前記一般式(E1-1)中、好ましくは $X_1$ 、 $X_5$ 、及び $X_9$ は置換基を表す。置換基として好ましくは、アルキル基(メチル、エチル、i-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、t-ブチル等)、ハロゲン原子(フッ素、塩素等)、アルコキシ基(メトキシ、エトキシ、i-プロポキシ、ブトキシ等)が挙げられる。

【0880】

前記一般式(E1-1)中、但し、 $X_1$ 、 $X_4$ 、 $X_5$ 、 $X_8$ 、 $X_9$ 及び $X_{12}$ のそれぞれの立体パラメータ $E_{s_{X_1}}$ 、 $E_{s_{X_4}}$ 、 $E_{s_{X_5}}$ 、 $E_{s_{X_8}}$ 、 $E_{s_{X_9}}$ 及び $E_{s_{X_{12}}}$ 値の合計値は、 $E_{s_{X_1}} + E_{s_{X_4}} + E_{s_{X_5}} + E_{s_{X_8}} + E_{s_{X_9}} + E_{s_{X_{12}}} \leq -1$ 、3を満たすものも好ましい。

【0881】

$A_1 \sim A_3$ は下記一般式(E1-2)で表される基を表し、各々異なっても同一でも良い。

【0882】

【化511】

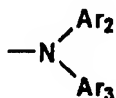
10

20

30

40

## 一般式(E1-2)



## 【0883】

式中、 $\text{Ar}_2$  及び  $\text{Ar}_3$  は置換又は無置換の芳香族炭化水素基を表し、各々異なっていて 10  
も同一でも良く、好ましくは置換又は無置換のフェニル基を表す。

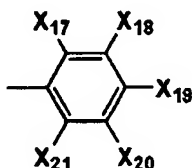
## 【0884】

また、一般式 (E1-2) における  $\text{Ar}_2$  及び  $\text{Ar}_3$  は  $\text{A}_1 \sim \text{A}_3$  はまた、好ましくは、  
下記一般式 (E1-3) で表される基を表し、各々異なっていて同一でも良い。

## 【0885】

## 【化512】

## 一般式(E1-3)



20

## 【0886】

一般式 (E1-3) 中、 $\text{X}_{17} \sim \text{X}_{21}$  は水素原子又は置換基を表し、置換として好まし  
くは、アルキル基 (メチル、エチル、*i*-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル  
、トリフルオロメチル、*t*-ブチル等)、ハロゲン原子 (弗素、塩素等)、アルコキシ基 30  
(メトキシ、エトキシ、*i*-プロポキシ、ブトキシ等) が挙げられる。

## 【0887】

前記一般式 (E1-1) 中、 $\text{X}_1 \sim \text{X}_{12}$  は水素原子又は置換基を表し各々異なっていて  
も同一でも良く、 $\text{X}_1$ 、 $\text{X}_4$ 、 $\text{X}_5$ 、 $\text{X}_8$ 、 $\text{X}_9$  及び  $\text{X}_{12}$  のうち少なくとも一つは置換  
基を表す。置換基として好ましくは、アルキル基 (メチル、エチル、*i*-プロピル、ヒド  
ロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、*t*-ブチル等)、ハロゲン原子 ( 弗素、塩素等)、アルコキシ基 (メトキシ、エトキシ、*i*-プロポキシ、ブトキシ等) が  
挙げられる。

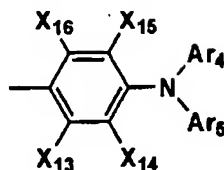
## 【0888】

前記一般式 (E1-1) の  $\text{A}_1 \sim \text{A}_3$  は、また好ましくは、下記一般式 (E1-4) で表 40  
される基を表し、各々異なっていて同一でも良い。

## 【0889】

## 【化513】

## 一般式(E1-4)



10

## 【0890】

式中、 $Ar_4$  及び  $Ar_5$  は置換又は無置換の芳香族炭化水素基を表し、各々異なっている同一でも良い。また、 $X_{13} \sim X_{16}$  は水素原子又は置換基を表し、各々異なっている同一でも良い。置換基として好ましくは、アルキル基（メチル、エチル、*i*-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、*t*-ブチル等）、ハロゲン原子（弗素、塩素等）、アルコキシ基（メトキシ、エトキシ、*i*-プロポキシ、ブトキシ等）が挙げられる。 $Ar_4$  及び  $Ar_5$  は置換又は無置換の芳香族炭化水素基を表し、各々異なっている同一でも良く、好ましくはフェニル基を表す。

## 【0891】

前記一般式（E1-1）中、 $X_1 \sim X_{12}$  は水素原子又は置換基を表し各々異なっている同一でも良く、 $X_1$ 、 $X_5$ 、及び  $X_9$  は置換基を表す。置換基として好ましくは、アルキル基（メチル、エチル、*i*-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、*t*-ブチル等）、ハロゲン原子（弗素、塩素等）、アルコキシ基（メトキシ、エトキシ、*i*-プロポキシ、ブトキシ等）が挙げられる。 $A_1 \sim A_3$  は前記一般式（4）で表される基を表し、各々異なっている同一でも良い。

20

## 【0892】

前記一般式（E1-1）中、 $X_1 \sim X_{12}$  は水素原子又は置換基を表し各々異なっている同一でも良い。但し、 $X_1$ 、 $X_4$ 、 $X_5$ 、 $X_8$ 、 $X_9$  及び  $X_{12}$  のそれぞれの立体パラメータ  $Es_{x1}$ 、 $Es_{x4}$ 、 $Es_{x5}$ 、 $Es_{x8}$ 、 $Es_{x9}$  及び  $Es_{x12}$  値の合計値は、 $Es_{x1} + Es_{x4} + Es_{x5} + Es_{x8} + Es_{x9} + Es_{x12} \leq -1.3$  を満たす。 $A_1 \sim A_3$  は前記一般式（4）で表される基を表し、各々異なっている同一でも良い。

30

## 【0893】

一般式（E1-5）中、 $X_{27} \sim X_{38}$  は水素原子又は置換基を表し、各々異なっている同一でも良い。置換基として好ましくは、アルキル基（メチル、エチル、*i*-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、*t*-ブチル等）、ハロゲン原子（弗素、塩素等）、アルコキシ基（メトキシ、エトキシ、*i*-プロポキシ、ブトキシ等）が挙げられる。 $Ar_6 \sim Ar_{11}$  は置換又は無置換の芳香族炭化水素基を表し、各々異なっている同一でも良く、好ましくは置換又は無置換のフェニル基を表す。

## 【0894】

上記一般式（E1-5）において、 $Ar_6 \sim Ar_{11}$  は一般式（E1-3）で表されるものが好ましい。

40

## 【0895】

一般式（E1-3）中、 $X_{17} \sim X_{21}$  は水素原子又は置換基を表し、各々異なっている同一でも良い。置換基として好ましくは、アルキル基（メチル、エチル、*i*-プロピル、ヒドロキシエチル、メトキシメチル、トリフルオロメチル、*t*-ブチル等）、ハロゲン原子（弗素、塩素等）、アルコキシ基（メトキシ、エトキシ、*i*-プロポキシ、ブトキシ等）が挙げられる。

## 【0896】

前記一般式（E1-1）～（E1-5）で示される芳香族アミン化合物の合成法は特に限

50



定されない。トリフェニルアミンを臭素化し、臭素置換物を得た後、これに相当する芳香族炭化水素のボロン酸をパラジウム触媒と塩基でスズキカップリングさせて合成する方法、トリフェニルアミンにKI、 $KIO_3$ 、酢酸を加えてフェニル基へのヨウ素置換物を得た後、これに、相当する2級アミン化合物を反応させて合成する方法、トリフェニルアミンを臭素化し、臭素置換物を得た後、これに相当する2級アミンを反応させて合成する方法が例示される。他のものについてもこの反応を利用して合成することができる。

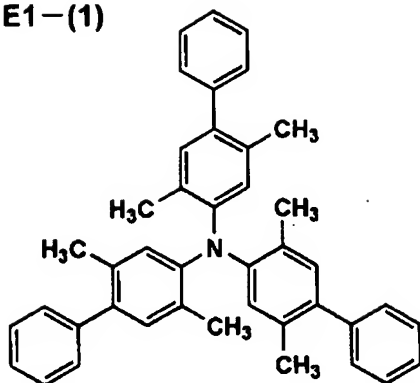
【0897】

次にこれらの代表的化合物を例示する。

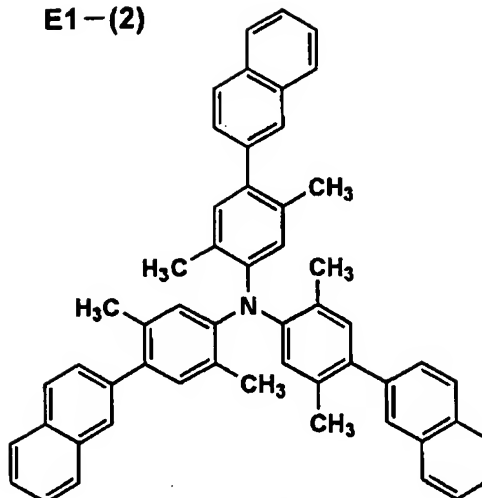
【0898】

【化514】

E1-(1)

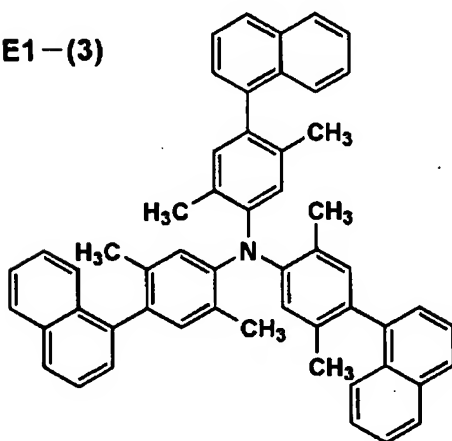


E1-(2)

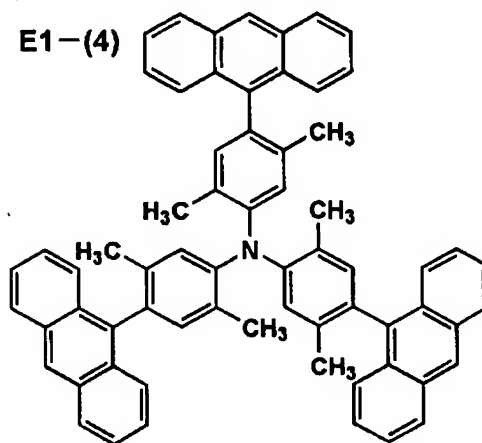


10

E1-(3)

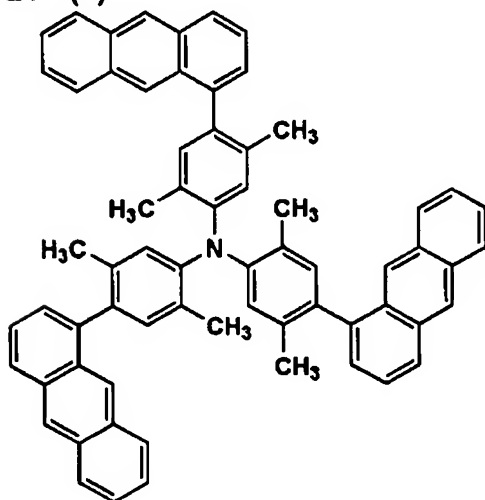


E1-(4)

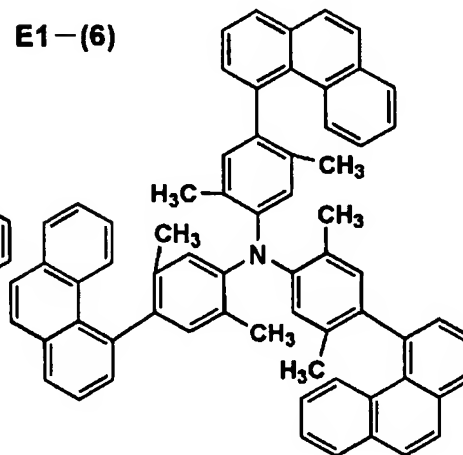


20

E1-(5)



E1-(6)



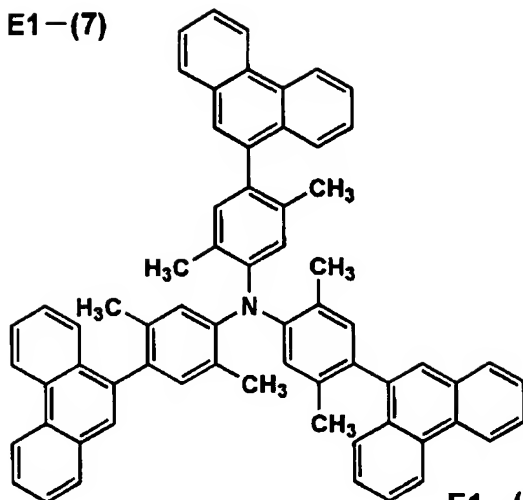
30

40

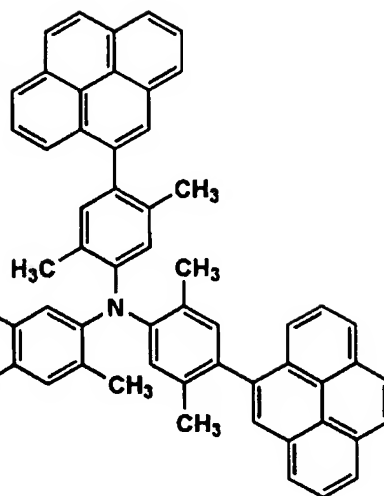
【 0 8 9 9 】

【 化 5 1 5 】

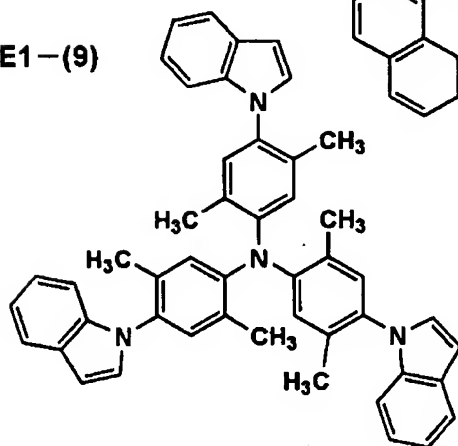
E1-(7)



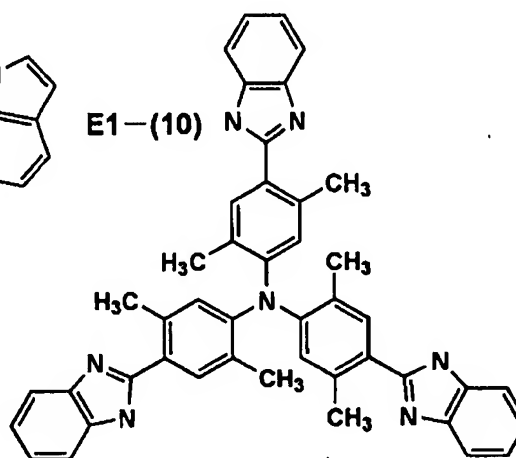
E1-(8)



E1-(9)

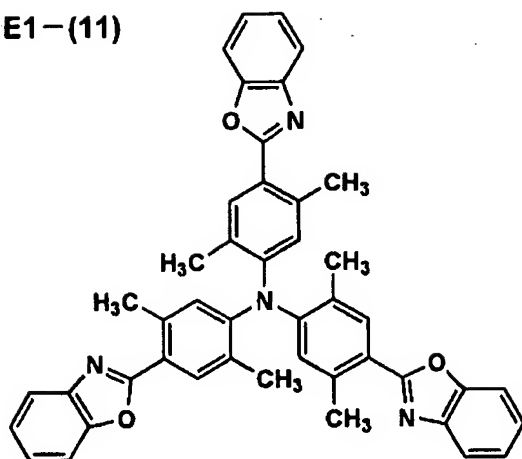


E1-(10)



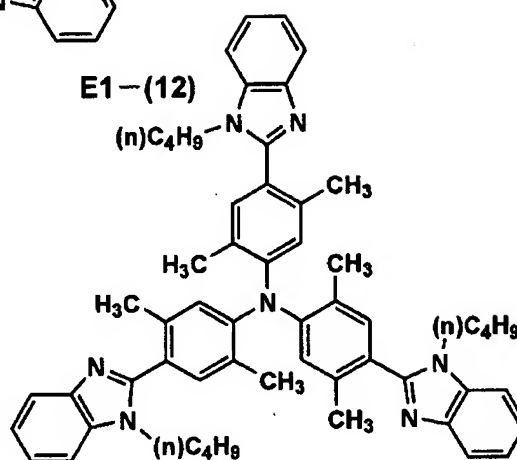
【 0 9 0 0 】  
【 化 5 1 6 】

E1-(11)



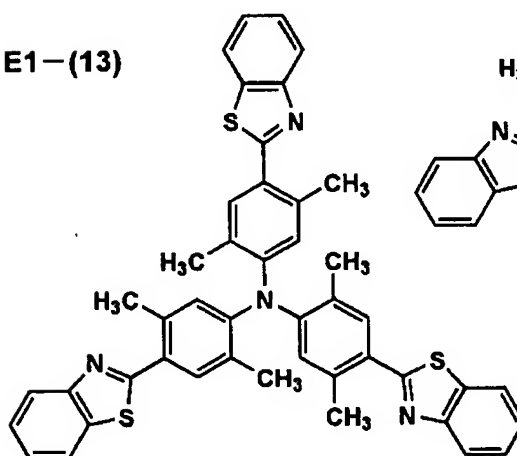
10

E1-(12)



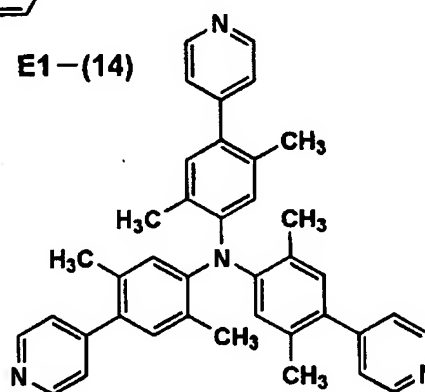
20

E1-(13)



30

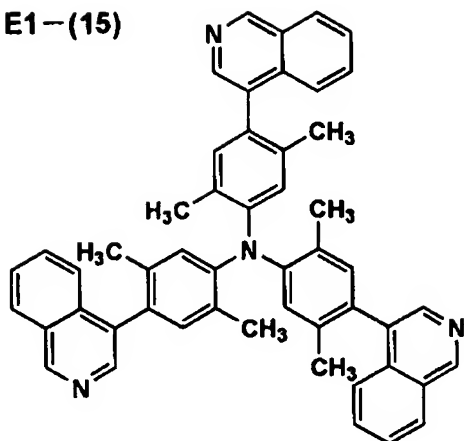
E1-(14)



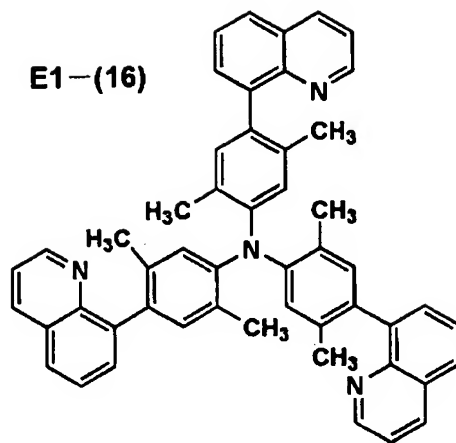
40

[ 0 9 0 1 ]  
[ 化 5 1 7 ]

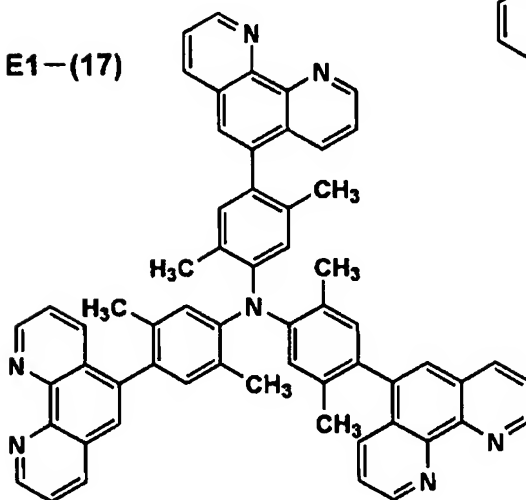
E1-(15)



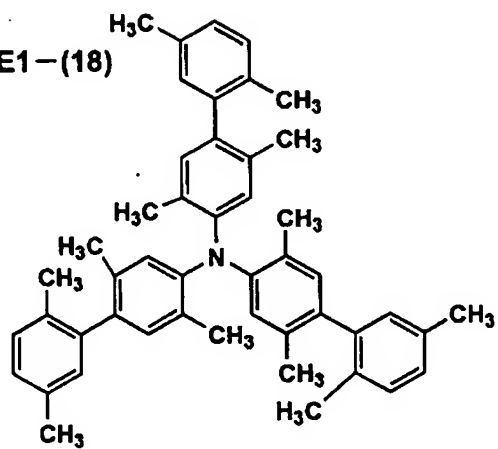
E1-(16)



E1-(17)

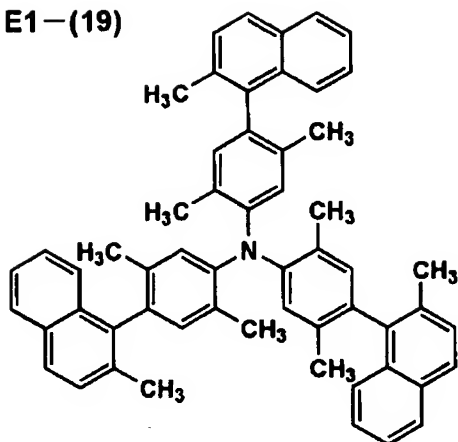


E1-(18)

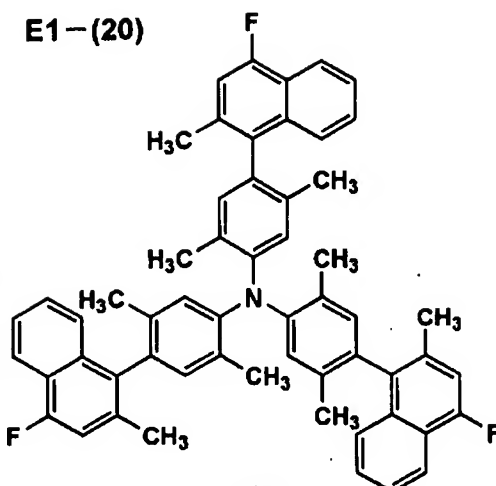


【 0 9 0 2 】  
【 化 5 1 8 】

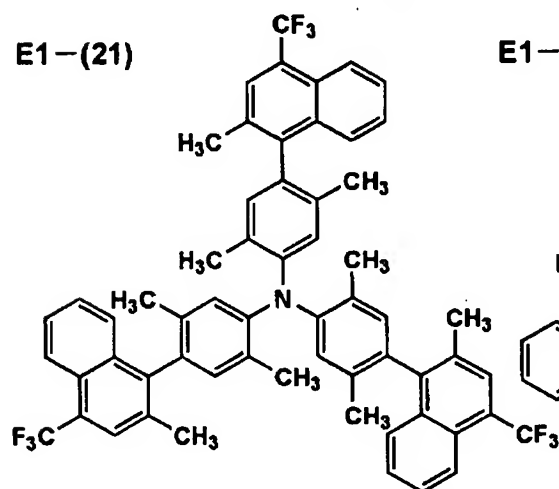
E1-(19)



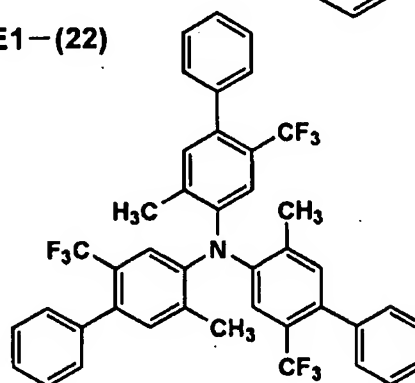
E1-(20)



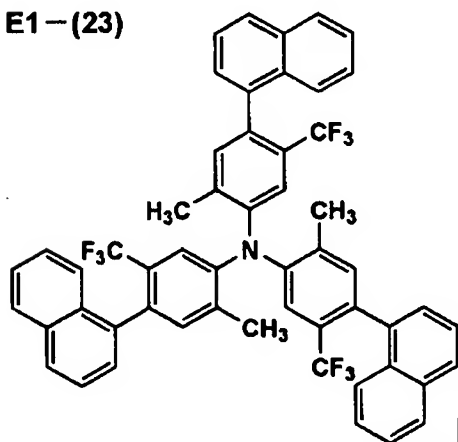
E1-(21)



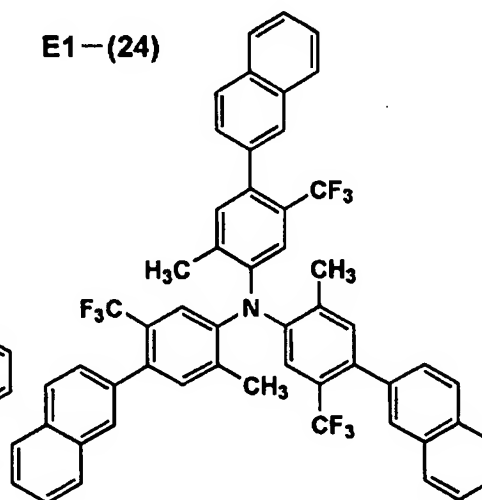
E1-(22)



E1-(23)



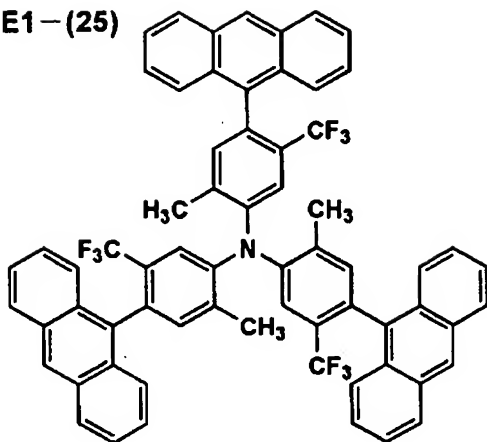
E1-(24)



【 0 9 0 3 】

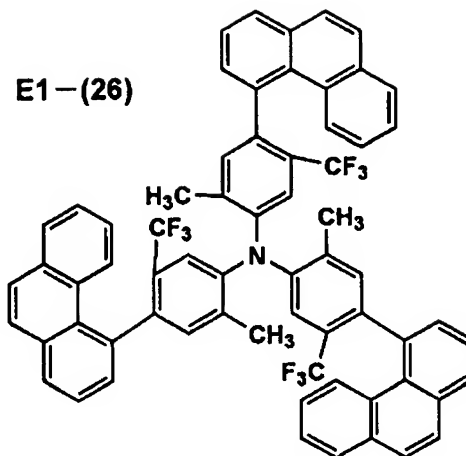
【 化 5 1 9 】

E1-(25)



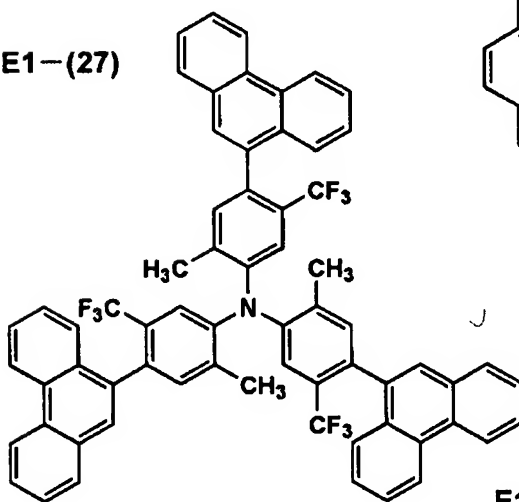
10

E1-(26)



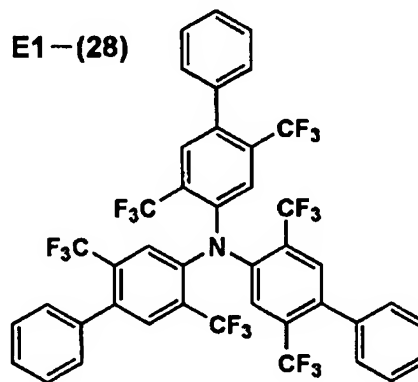
20

E1-(27)



30

E1-(28)

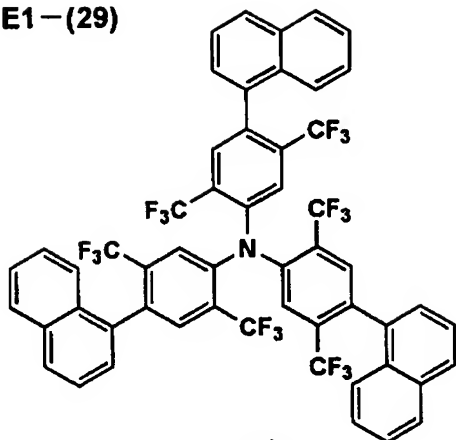


40

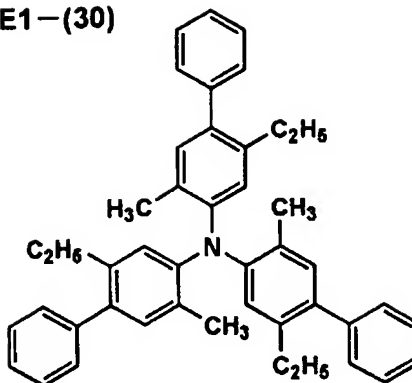
【 0 9 0 4 】

【 化 5 2 0 】

E1-(29)

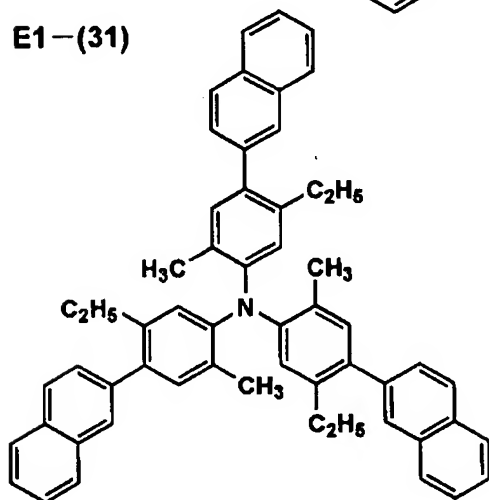


E1-(30)

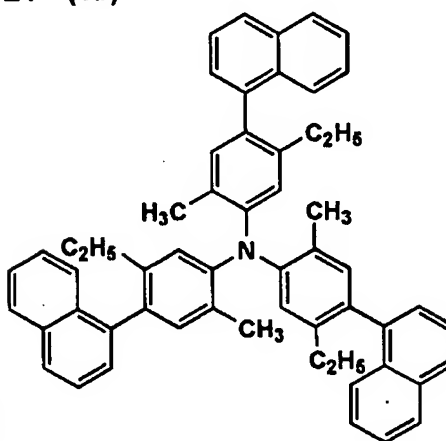


10

E1-(31)

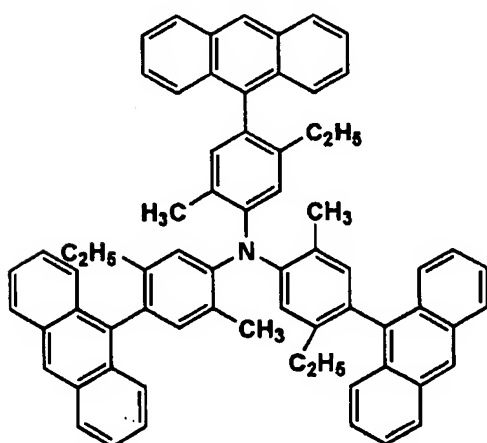


E1-(32)

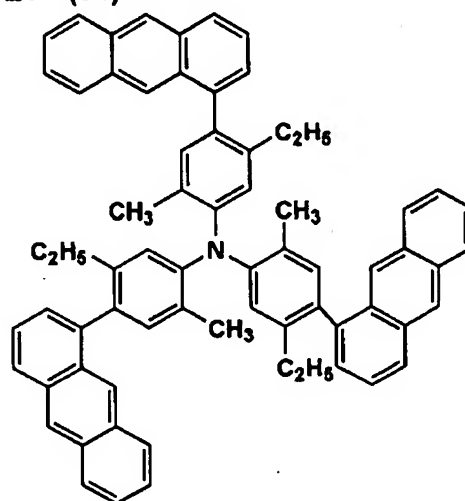


20

E1-(33)



E1-(34)



30

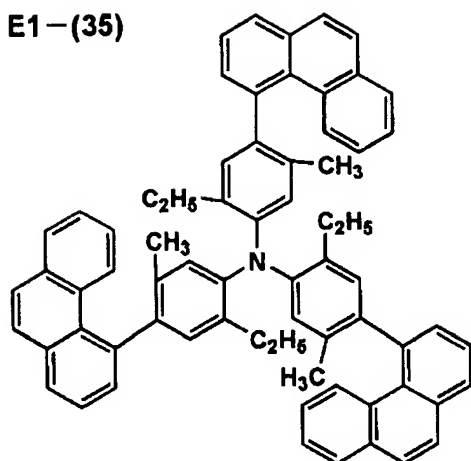
40

【 0 9 0 5 】

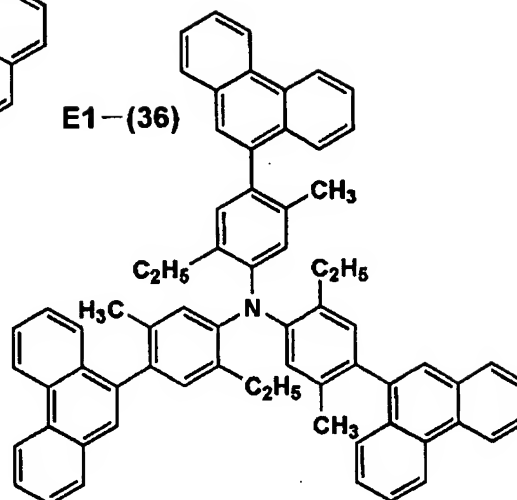
【 化 5 2 1 】



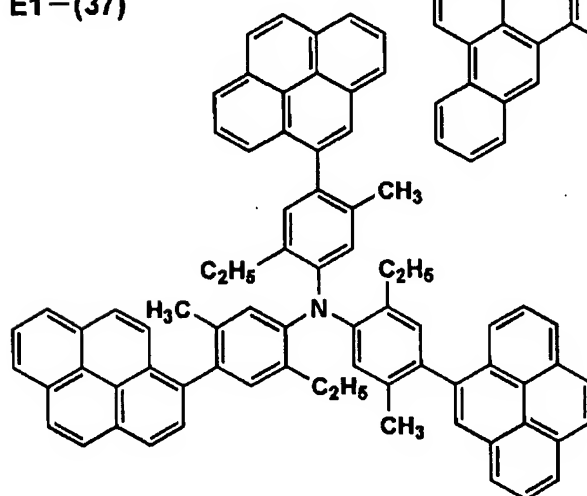
E1-(35)



E1-(36)



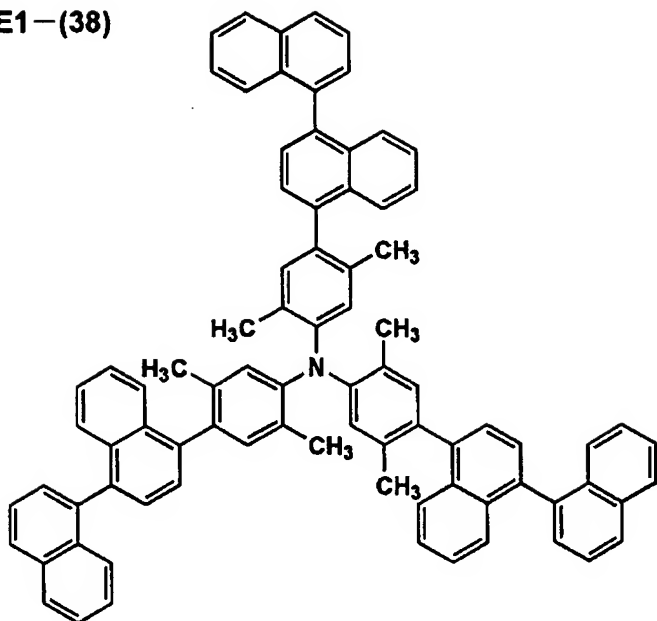
E1-(37)



【 0 9 0 6 】

【 化 5 2 2 】

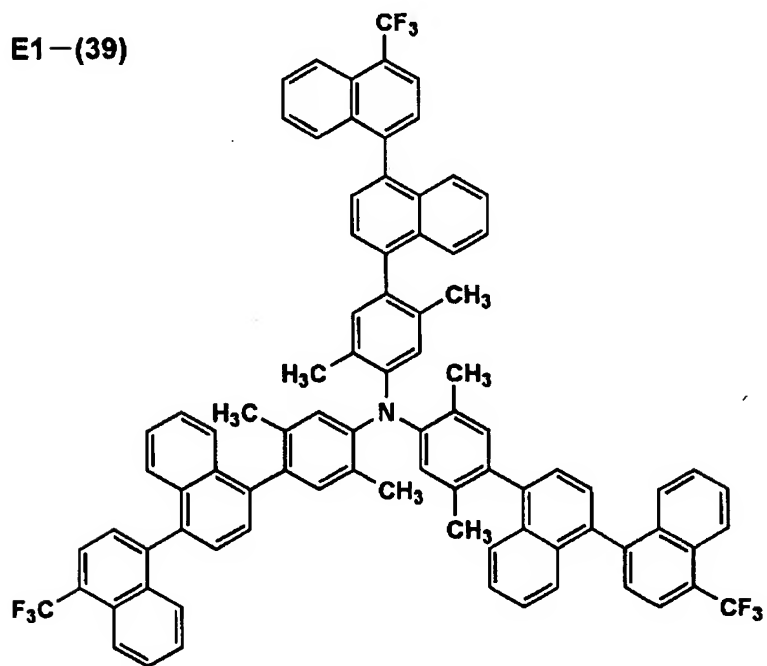
E1-(38)



10

20

E1-(39)



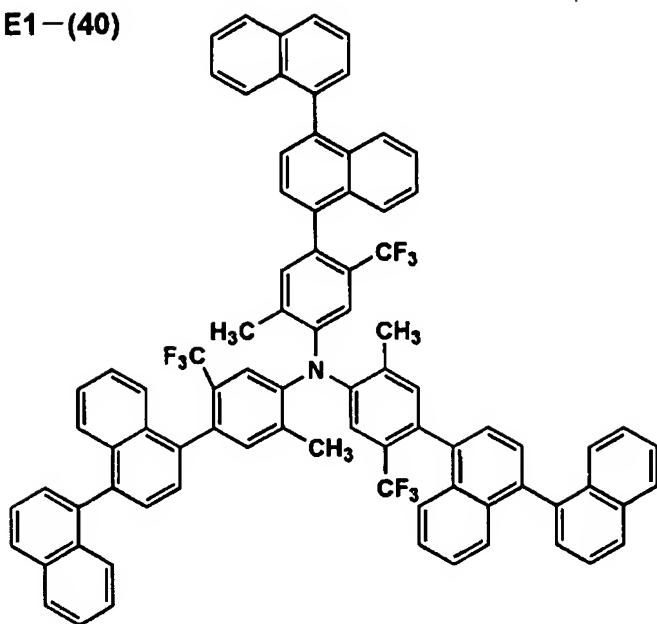
30

40

【 0 9 0 7 】

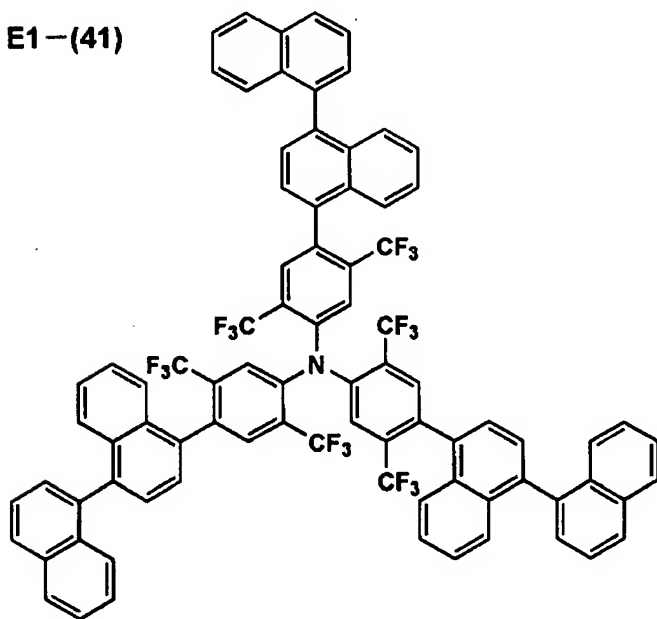
【 化 5 2 3 】

E1-(40)



10

E1-(41)



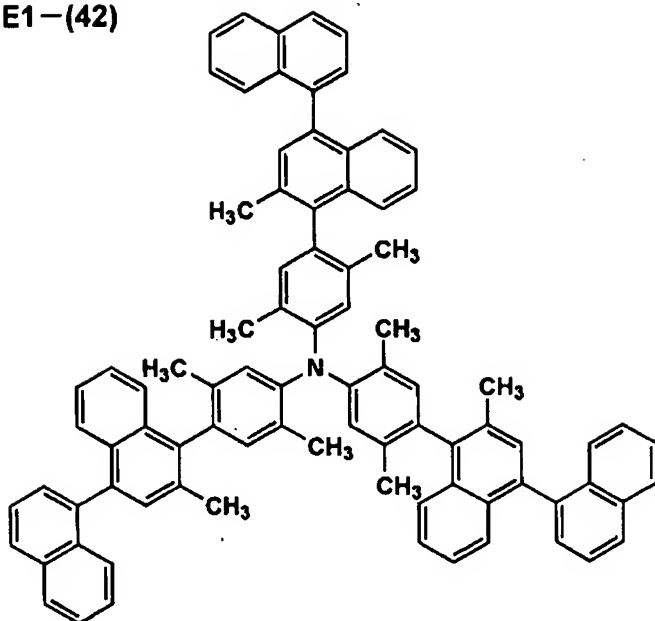
30

【 0 9 0 8 】

【 化 5 2 4 】

40

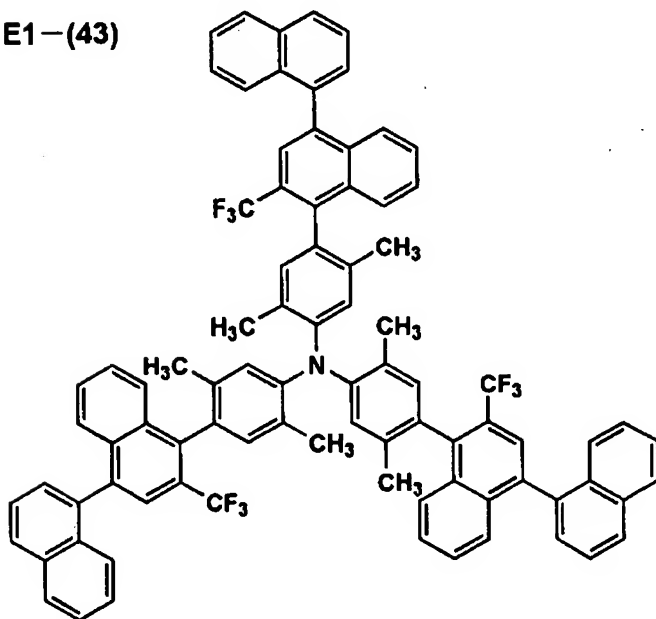
E1-(42)



10

20

E1-(43)

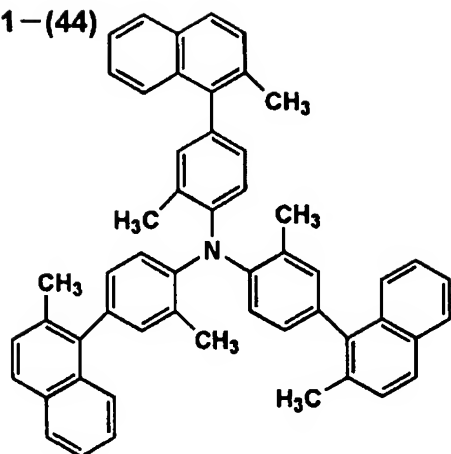


30

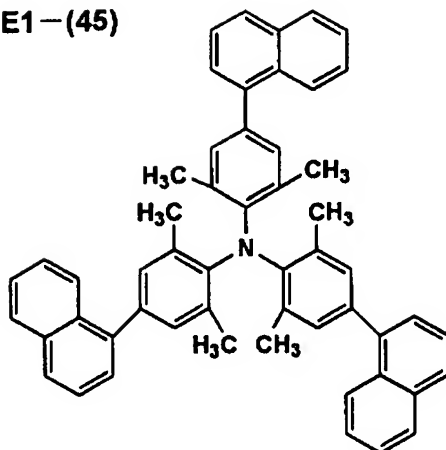
[ 0 9 0 9 ]  
[ 化 5 2 5 ]

40

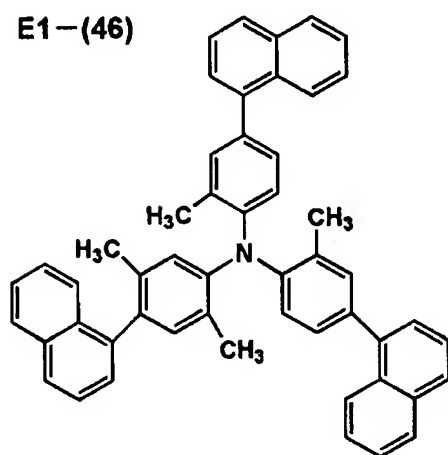
E1-(44)



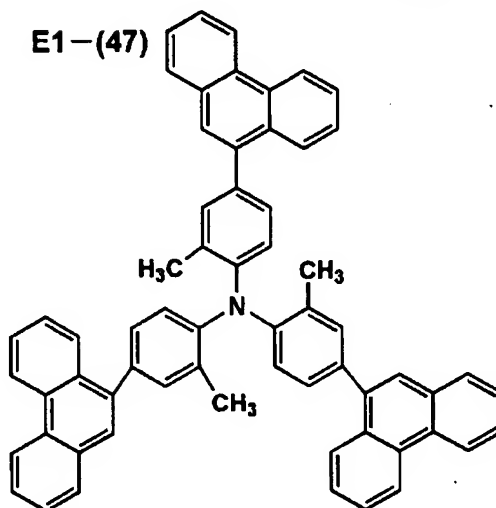
E1-(45)



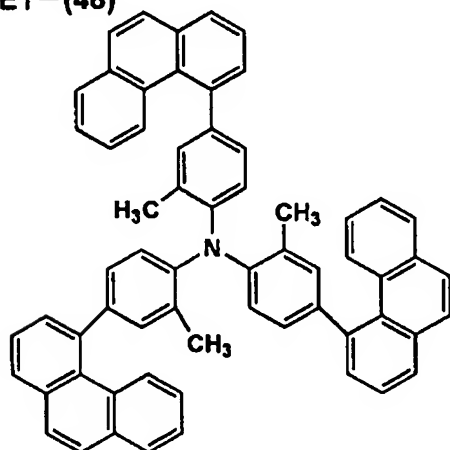
E1-(46)



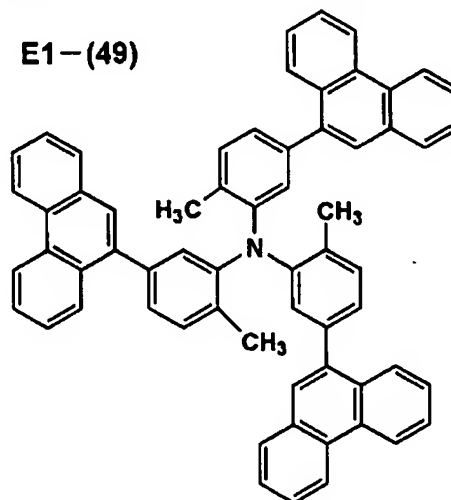
E1-(47)



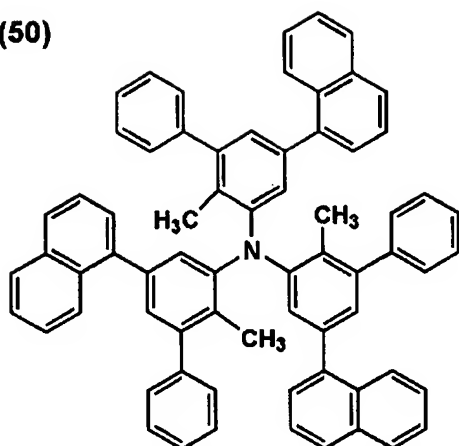
E1-(48)



E1-(49)

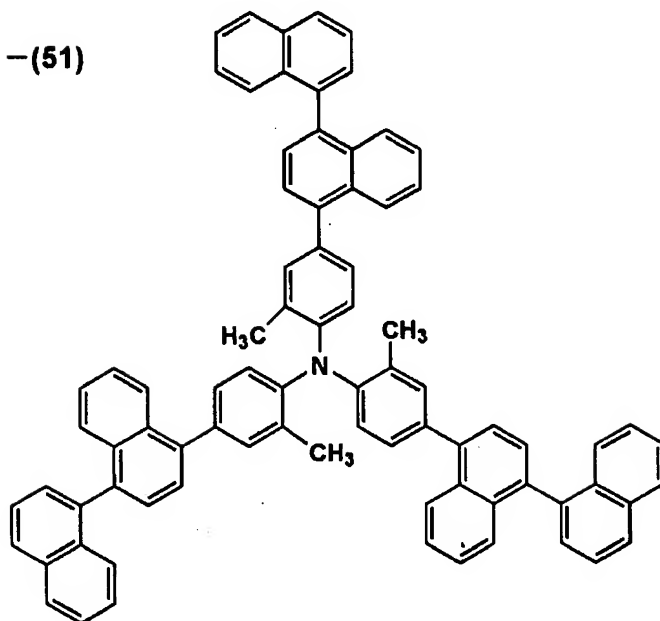


E1-(50)



10

E1-(51)



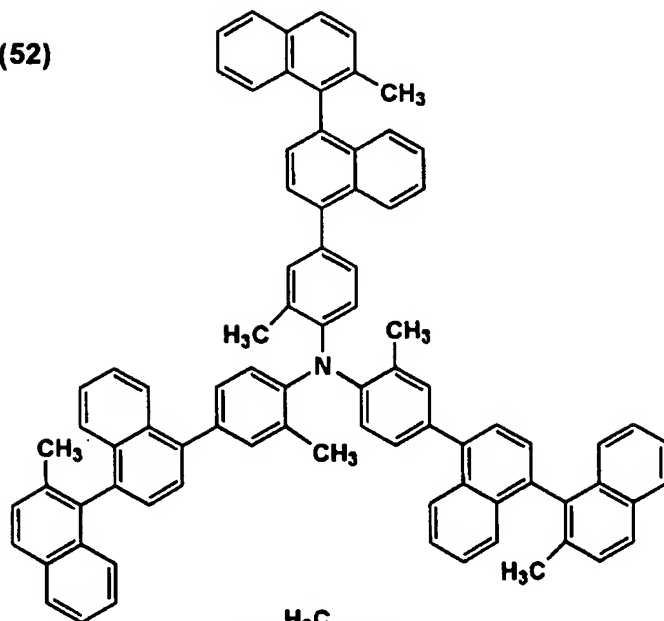
20

30

【 0 9 1 1 】

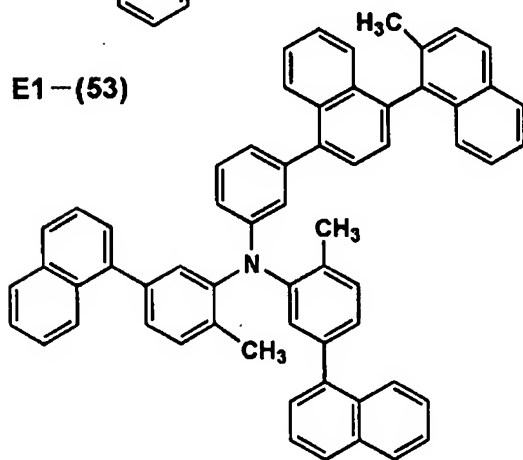
【 化 5 2 7 】

E1-(52)



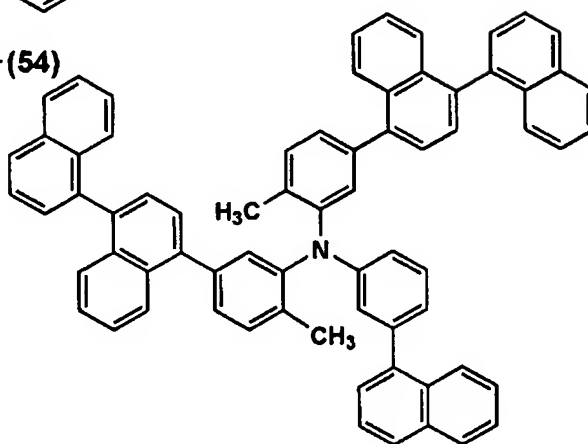
10

E1-(53)



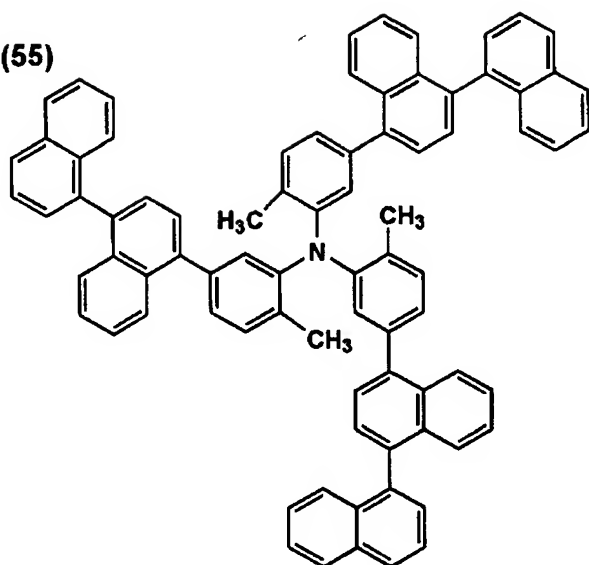
20

E1-(54)



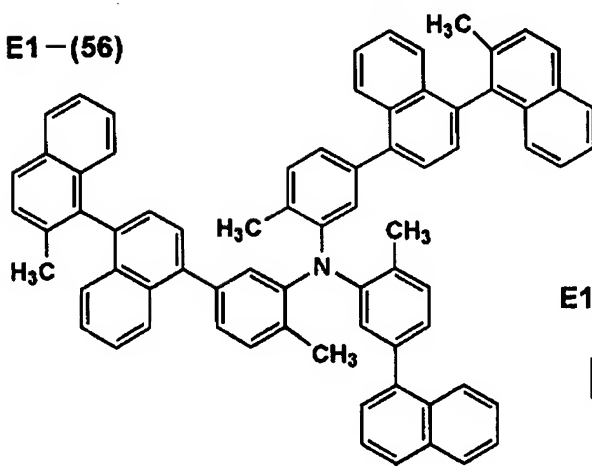
40

E1-(55)



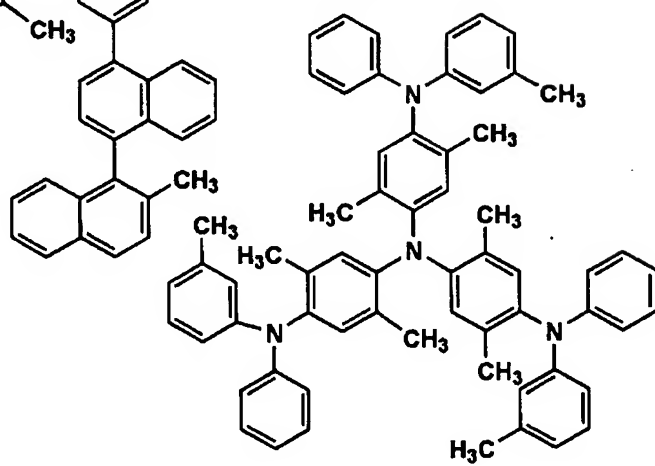
10

E1-(56)



20

E1-(57)



30

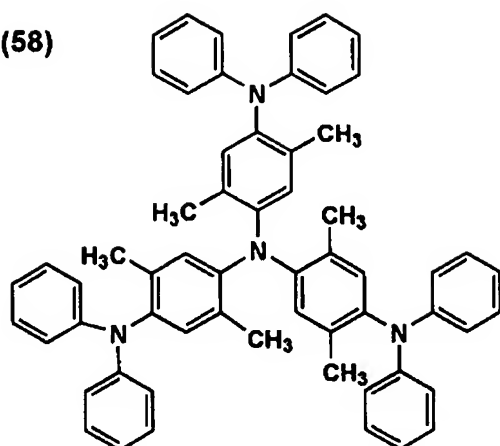
40

【 0 9 1 3 】

【 化 5 2 9 】

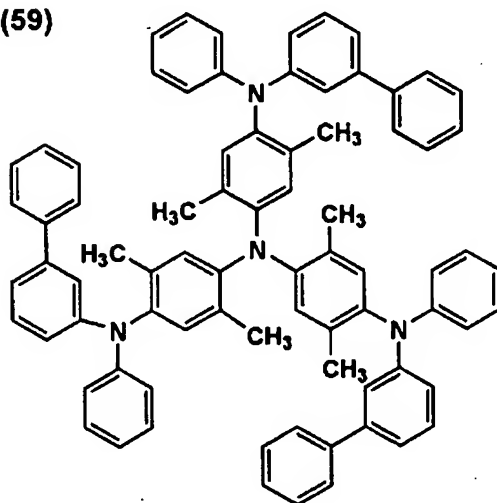


E1-(58)



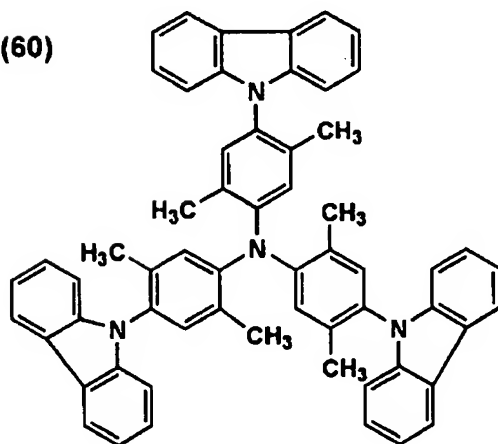
10

E1-(59)



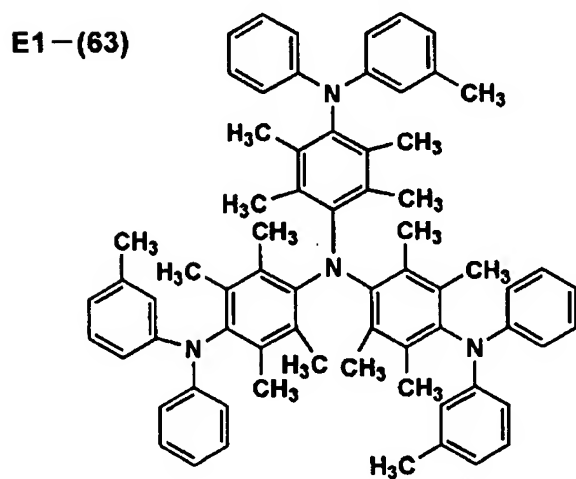
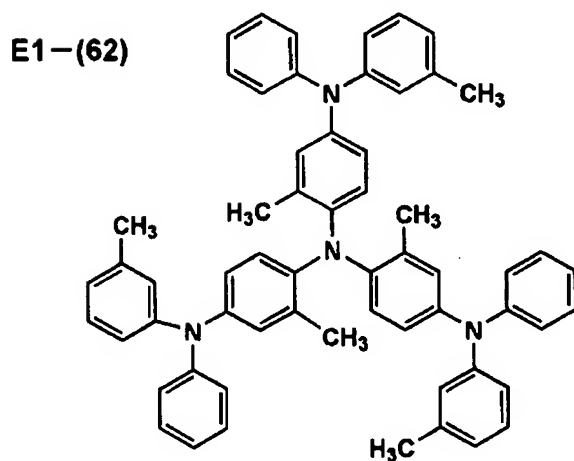
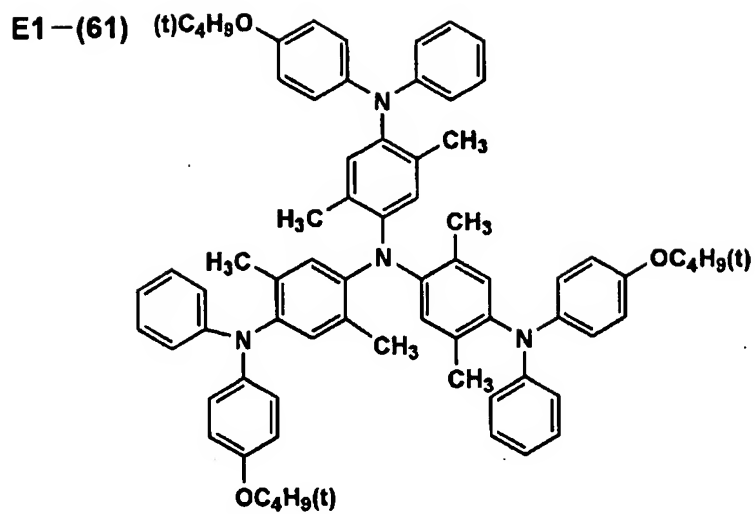
20

E1-(60)



40

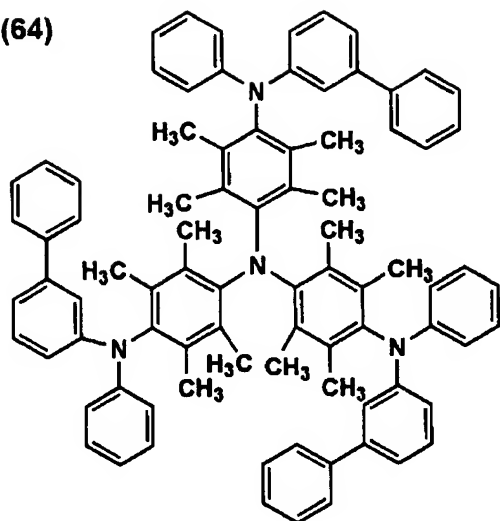
[ 0 9 1 4 ]  
[ 化 5 3 0 ]



[ 0 9 1 5 ]  
[ 化 5 3 1 ]

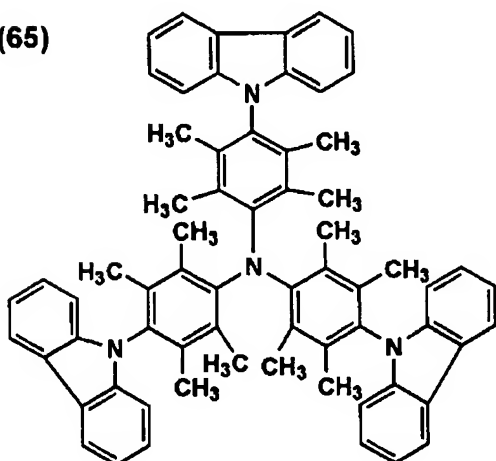
40

E1-(64)



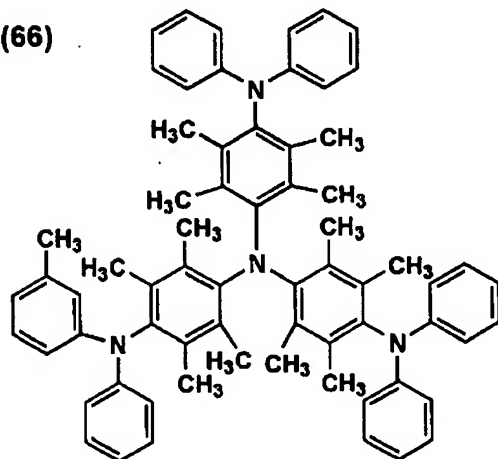
10

E1-(65)



20

E1-(66)



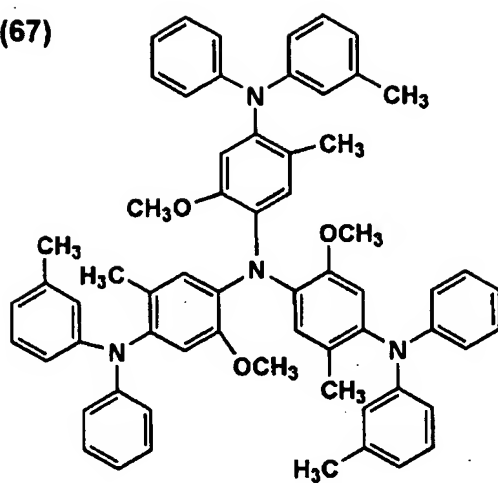
30

40

【 0 9 1 6 】

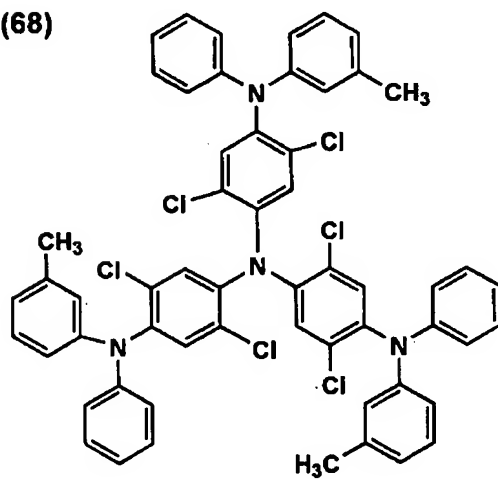
【 化 5 3 2 】

E1-(67)



10

E1-(68)



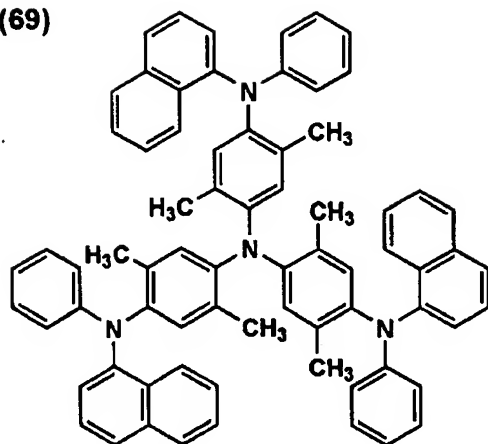
20

30

[ 0 9 1 7 ]

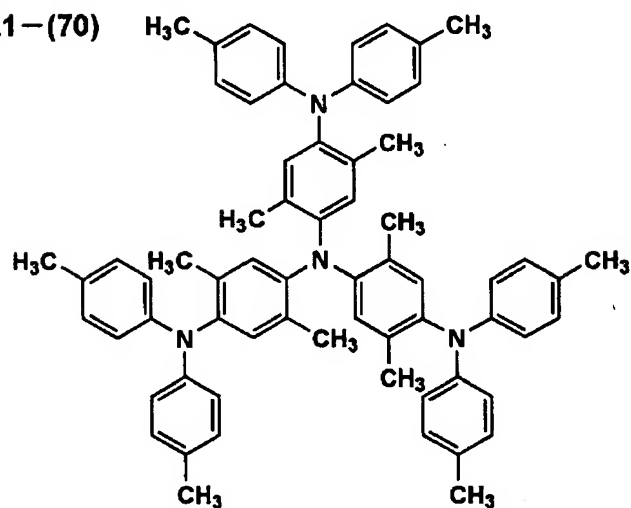
[ 化 5 3 3 ]

E1-(69)



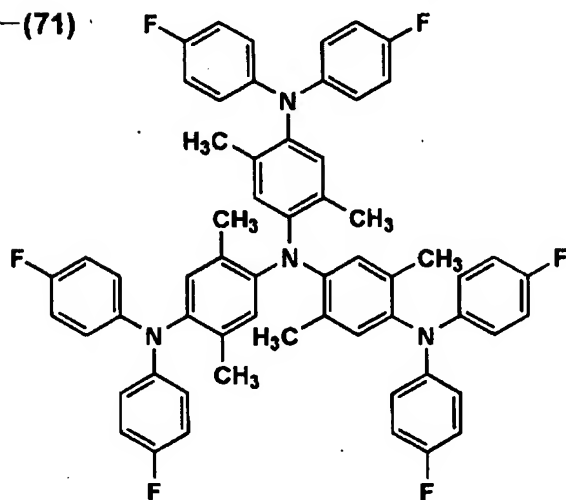
10

E1-(70)



20

E1-(71)



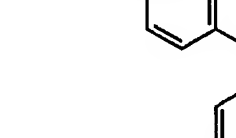
30

40

[ 0 9 1 8 ]  
[ 化 5 3 4 ]

10

(73)

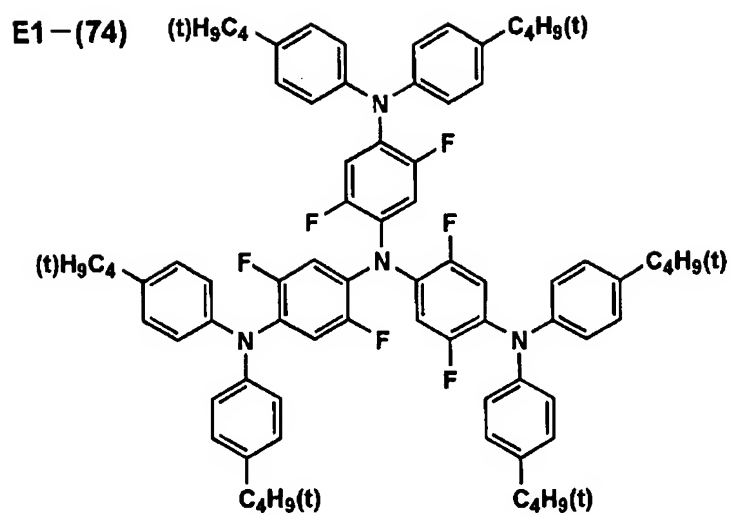


Chemical structure of compound (73), a bis(phenyl)phosphine oxide derivative. The central phosphorus atom is bonded to two phenyl rings. Each phenyl ring is substituted with a 4-methylphenyl group and a 4-(4-methylphenyl)phenyl group. The central phosphorus atom is also bonded to two trifluoromethyl groups (CF<sub>3</sub>).

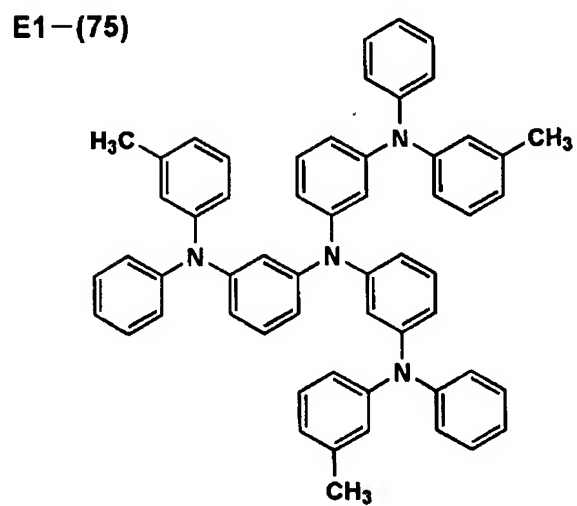
20

30

【 0 9 1 9 】  
【 化 5 3 5 】



10



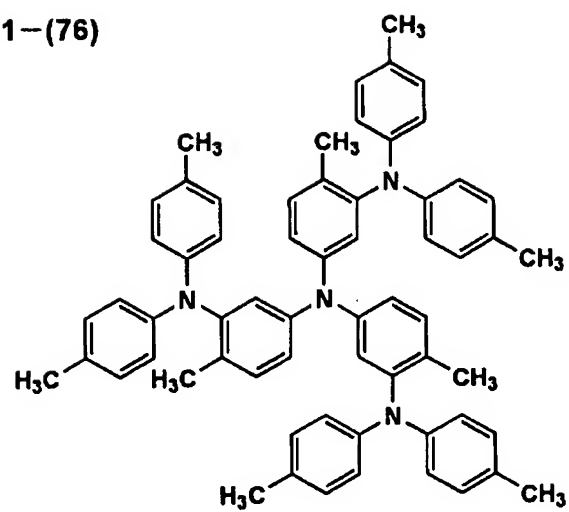
20

30

【 0 9 2 0 】

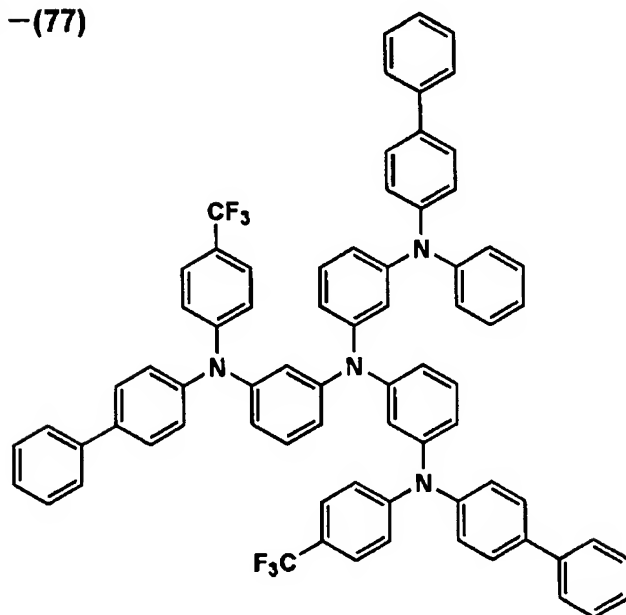
【 化 5 3 6 】

E1-(76)



10

E1-(77)



20

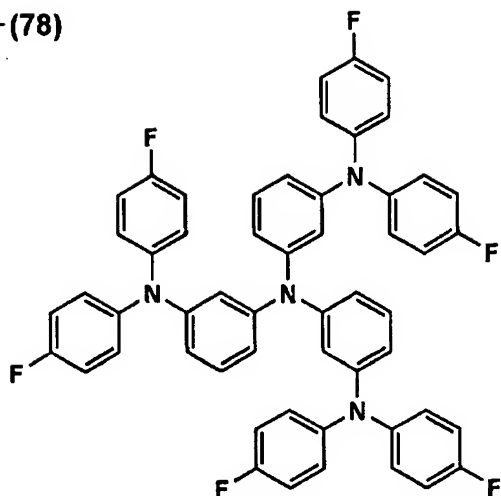
30

【 0 9 2 1 】

【 化 5 3 7 】

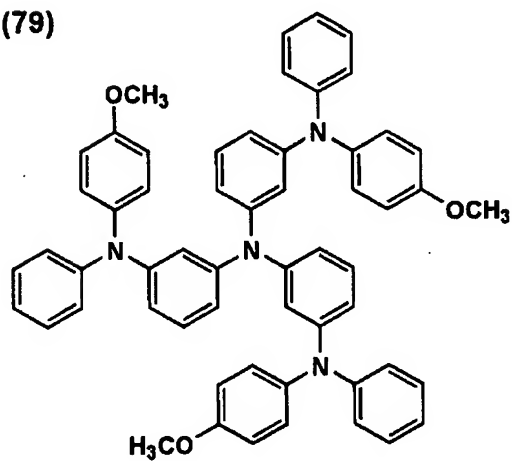


E1-(78)



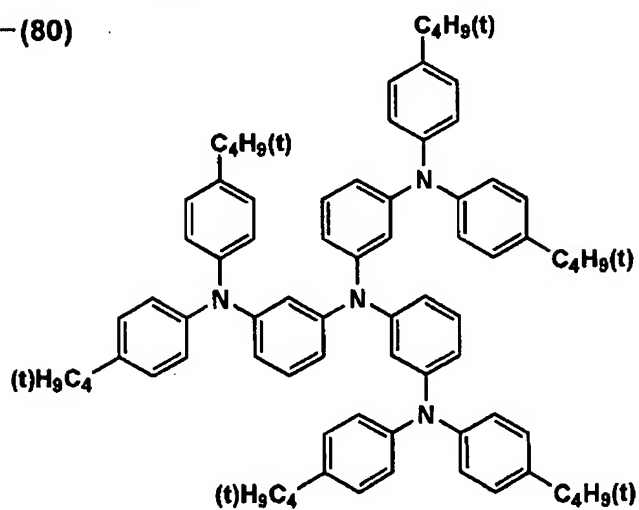
10

E1-(79)



20

E1-(80)



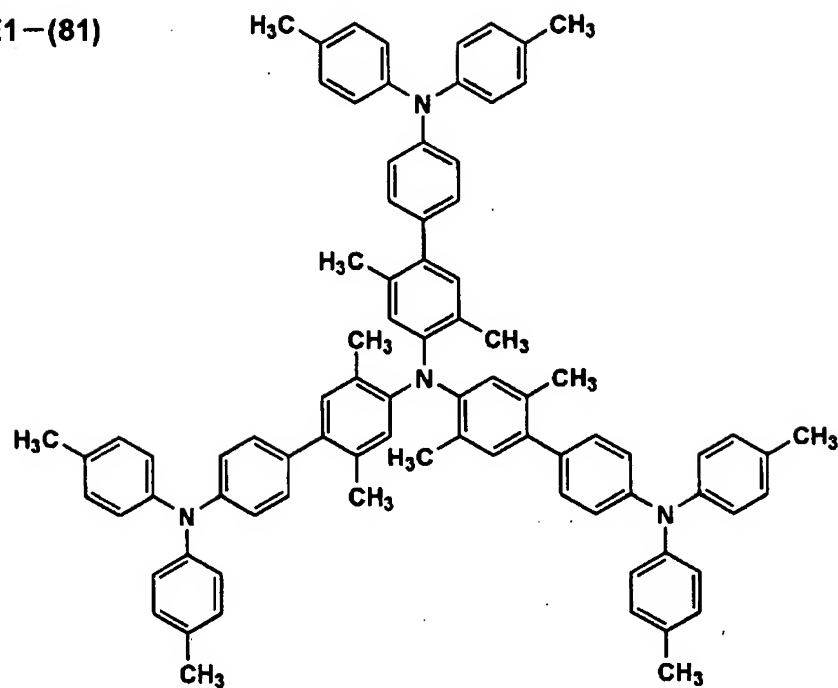
30

40

[ 0 9 2 2 ]

[ 化 5 3 8 ]

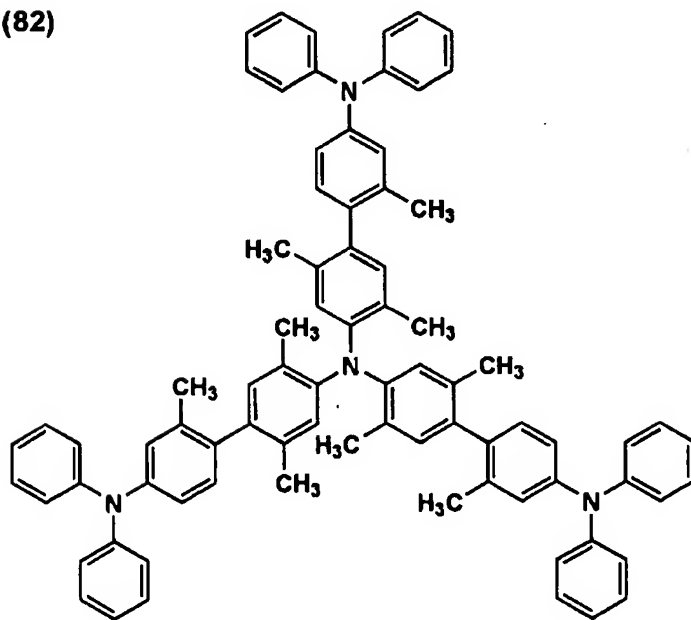
E1-(81)



10

20

E1-(82)



30

40

## 【0923】

又、これらの化合物を有機EL素子の正孔輸送層として用いる場合、その純度が発光特性に影響を与えるため、合成後、再沈精製、昇華精製等の純化をすることが望ましい。

## 【0924】

一般式(E2-1)、(E2-5)で表される化合物について説明する。

## 【0925】

一般式(E2-1)、(E2-5)で表される化合物は、ガラス転移温度(T<sub>g</sub>)が高いことから、有機エレクトロルミネッセンス素子の材料としての熱安定性も十分にあり、T

50

gとしては100度以上であることが好ましい。

【0926】

前記一般式(E2-1)において、 $X_1$ 乃至 $X_8$ 、及び $R_1$ 乃至 $R_{20}$ は各々水素原子又は置換基を表し、各々異なっても同一でも良く、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_5$ 及び $X_6$ のうち少なくとも1つは置換基を表す。 $X_1$ 乃至 $X_8$ 、及び $R_1$ 乃至 $R_{20}$ が置換基を表す場合、その置換として好ましくは、アルキル基(例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロ-n-ブチル基、パーフルオロ-t-ブチル基、t-ブチル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アラルキル基(例えば、ベンジル基、2-フェネチル基等)、アリール基(例えば、フェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等)、アルコキシ基(例えば、メトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキシ基等)、アリールアミノ基(例えば、ジフェニルアミノ基等)等が挙げられる。これらの基はさらに置換されていてもよく、置換基としては、例えば、ハロゲン原子、水素原子、トリフルオロメチル基、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、ジアルキルアミノ基、ジベンジルアミノ基、ジアリールアミノ基等が挙げられる。

10

【0927】

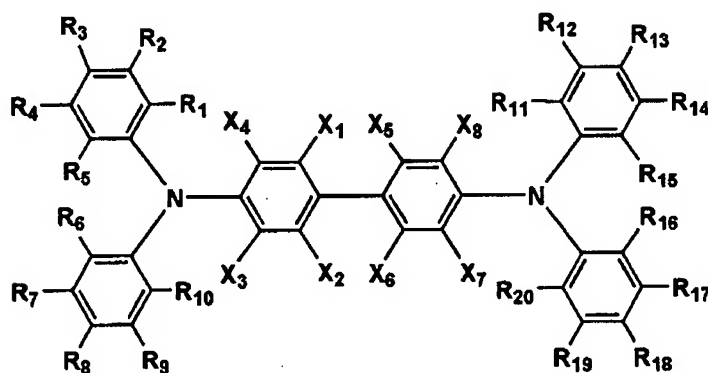
前記一般式(E2-1)で表される化合物は、好ましくは下記一般式(E2-2)で表される。

20

【0928】

【化539】

一般式(E2-2)



30

【0929】

一般式(E2-2)において、 $X_1$ 乃至 $X_8$ 、及び $R_1$ 乃至 $R_{20}$ は各々水素原子又は置換基を表し、各々異なっても同一でも良く、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_5$ 及び $X_6$ のうち少なくとも2つは置換基を表す。置換基としては、上述の一般式(E2-1)で置換基の例として記載したものと同一ものが挙げられる。

40

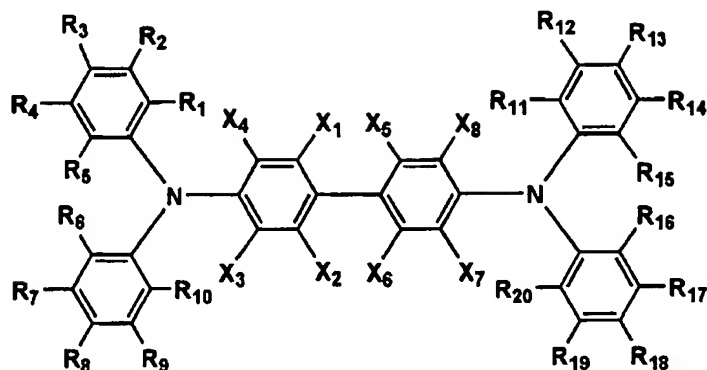
【0930】

前記一般式(E2-1)で表される化合物はまた、好ましくは下記一般式(E2-3)で表される。

【0931】

【化540】

## 一般式(E2-3)



10

## 【0932】

一般式(E2-3)において、 $X_1$  乃至  $X_8$ 、及び  $R_1$  乃至  $R_{20}$  は各々水素原子又は置換基を表し、各々異なっている同一でも良く、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_5$  及び  $X_6$  のうち少なくとも3つは置換基を表す。置換基としては、上述の一般式(E2-1)で置換基の例として記載したものと同一ものが挙げられる。

20

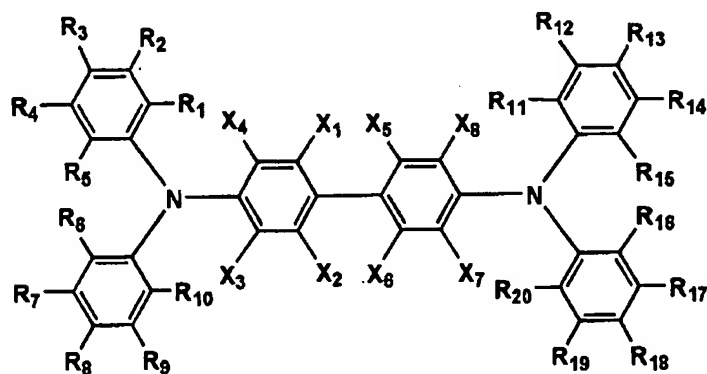
## 【0933】

前記一般式(1)で表される化合物はまた、好ましくは下記一般式(E2-4)で表される。

## 【0934】

## 【化541】

## 一般式(E2-4)



30

## 【0935】

一般式(E2-4)において、 $X_1$  乃至  $X_8$ 、及び  $R_1$  乃至  $R_{20}$  は各々水素原子又は置換基を表し、各々異なっている同一でも良く、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_5$  及び  $X_6$  は置換基を表す。置換基としては、上述の一般式(E2-1)で置換基の例として記載したものと同一ものが挙げられる。

## 【0936】

前記一般式(E2-5)において、 $X_1$  乃至  $X_8$ 、及び  $R_1$  乃至  $R_{20}$  は各々水素原子又は置換基を表し、各々異なっている同一でも良く、 $X_1$ 、 $X_2$ 、 $X_5$  及び  $X_6$  のそれぞ

40

50

れの立体パラメータ  $E s X_1$ 、 $E s X_2$ 、 $E s X_5$  及び  $E s X_6$  の合計値 ( $E s X_1 + E s X_2 + E s X_5 + E s X_6$ ) が  $-2.5$  以下である。

【0937】

前記一般式 (E 2-1)、(E 2-5) で示される化合物の合成法は特に限定されない。例えば、芳香族アミンと芳香族沃素化物との銅触媒を用いるウルマン反応によっておこなうことができる。また、トリフェニルアミンのハロゲン化物どうしを、ニッケル、パラジウム触媒を用いてカップリング反応させてもおこなうことができる。たとえば、臭化物をグリニヤール試薬とし、別の臭化物とニッケル触媒 ( $Ni(dppe)Cl_2$  等) を用いてカップリングすることができる。また、臭化物をアルキルリチウム試薬を用いてリチウム化した後、ほう酸に誘導したものと、別の臭化物をパラジウム触媒 ( $Pd(PPh_3)_4$  等) を用いてカップリングすることができる。また、臭化物を亜鉛を還元剤として、ニッケル触媒を用いてカップリングすることができる。

10

【0938】

また、これらの有機化合物を有機 EL 素子の正孔輸送層として用いる場合、その純度が発光特性に影響を与えるため、合成後、再沈精製、昇華精製等の純化をすることが望ましい。

【0939】

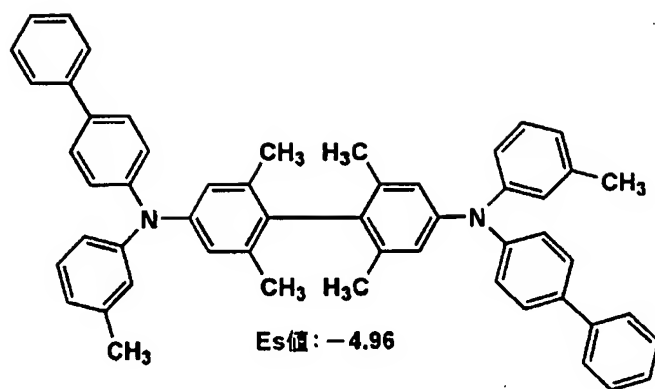
以下に、本発明に係る一般式 (E 2-1) ~ (E 2-5) で表される有機化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0940】

20

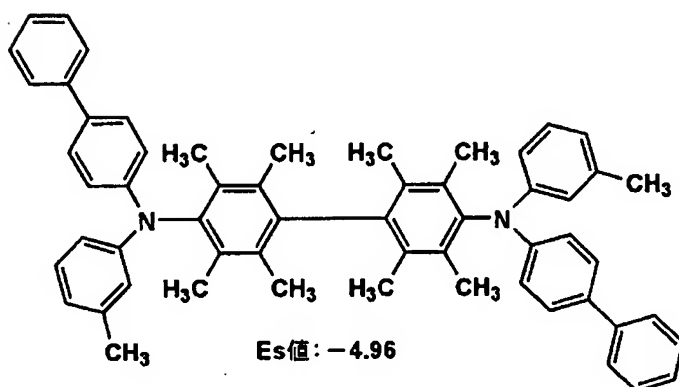
【化542】

E2-(1)



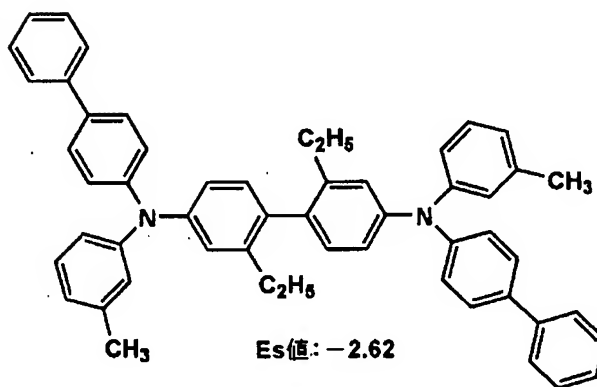
10

E2-(2)



20

E2-(3)



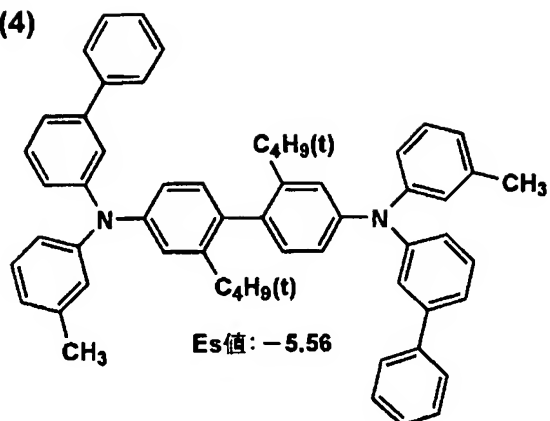
30

【 0 9 4 1 】

【 化 5 4 3 】

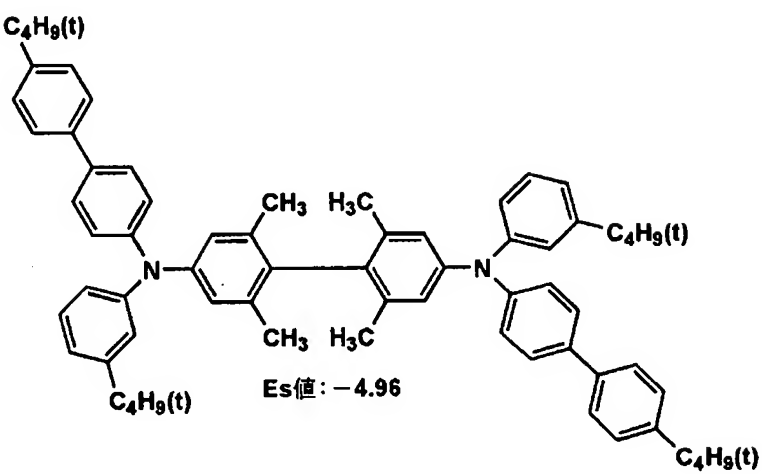
40

E2-(4)



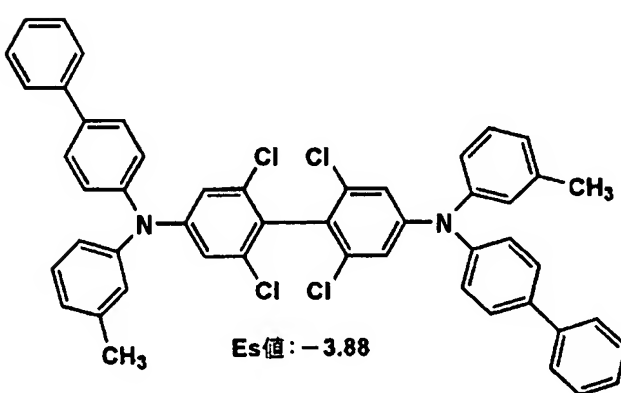
10

E2-(5)



20

E2-(6)

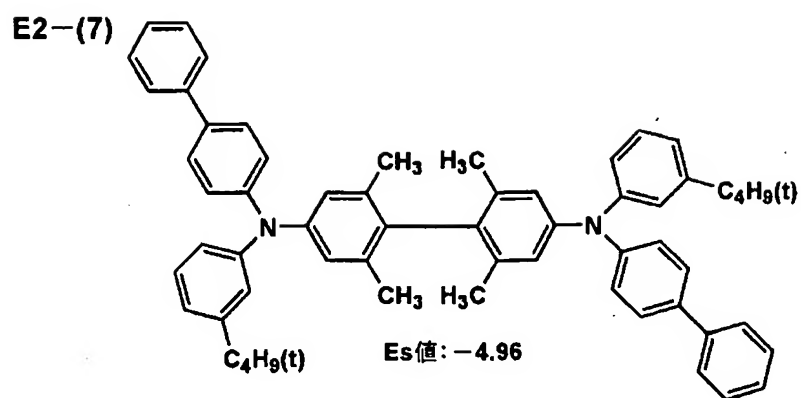


30

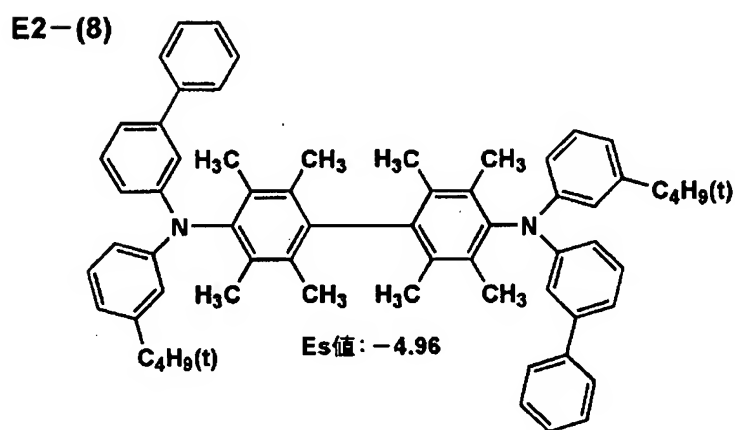
40

【 0 9 4 2 】

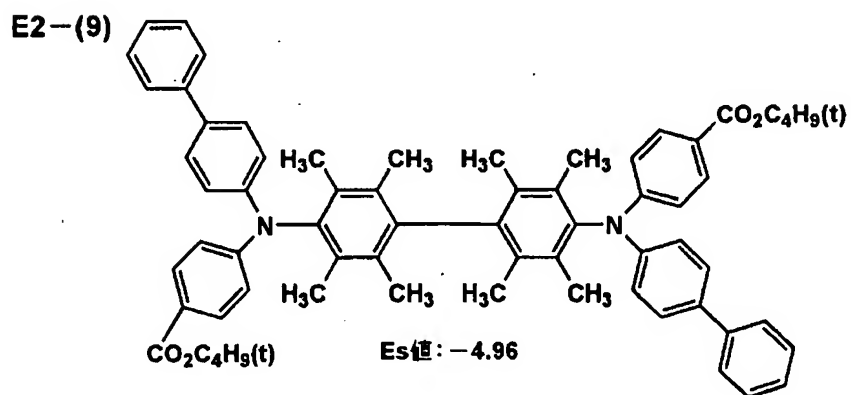
【 化 5 4 4 】



10



20



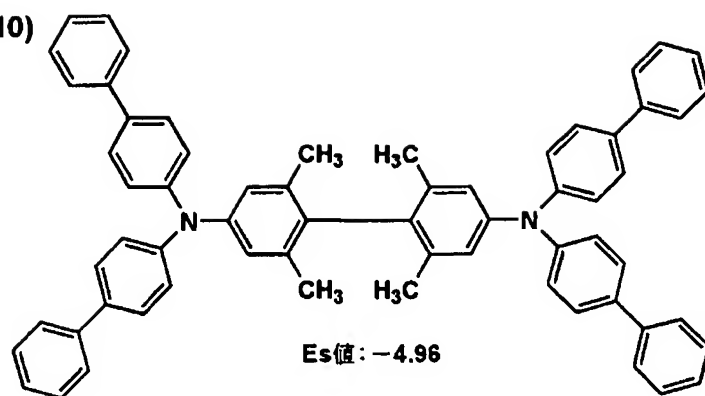
30

40

[ 0 9 4 3 ]  
[ 化 5 4 5 ]

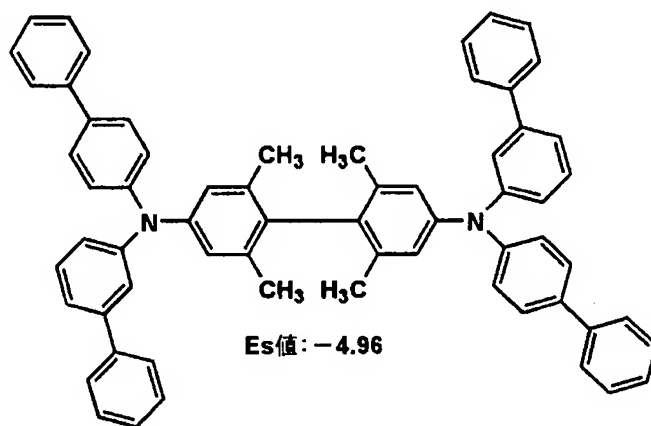


E2-(10)



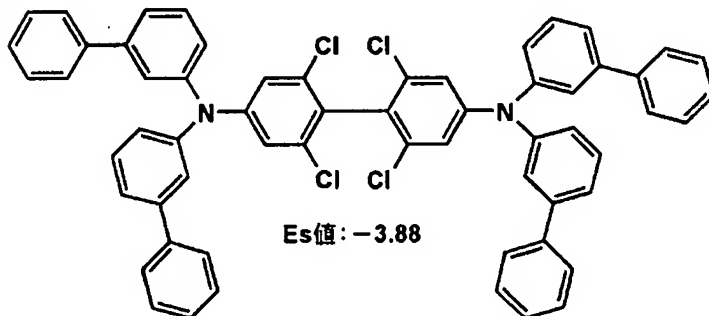
10

E2-(11)



20

E2-(12)



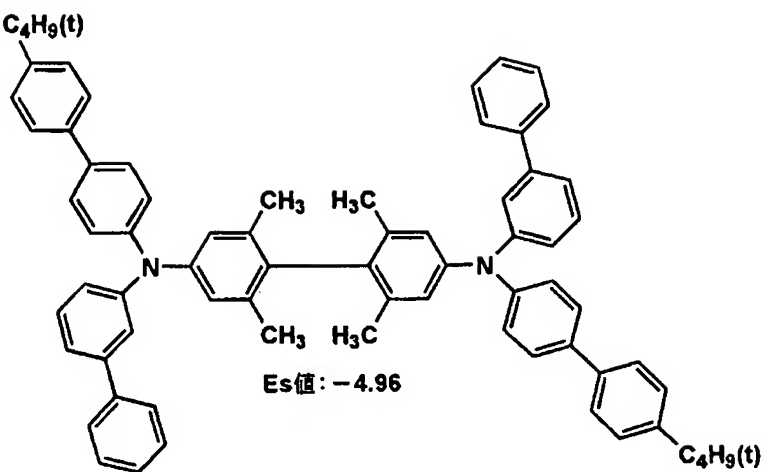
30

【 0 9 4 4 】

【 化 5 4 6 】

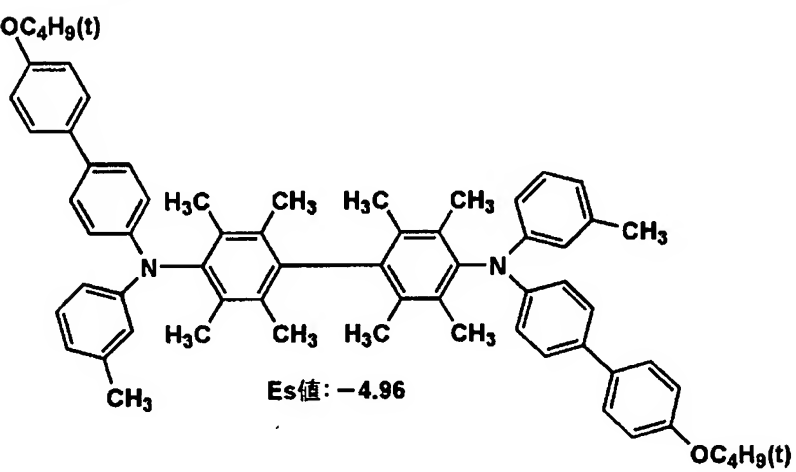
40

E2-(13)



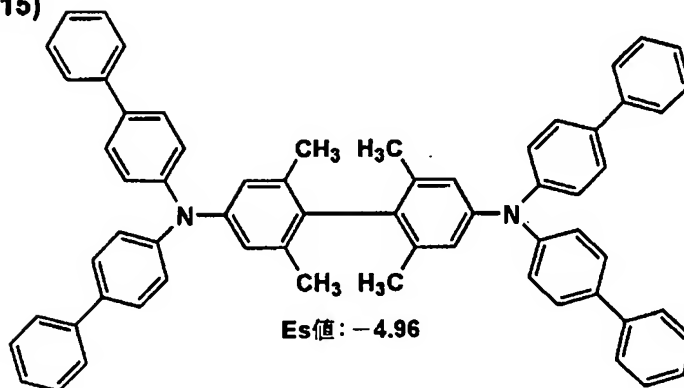
10

E2-(14)



20

E2-(15)

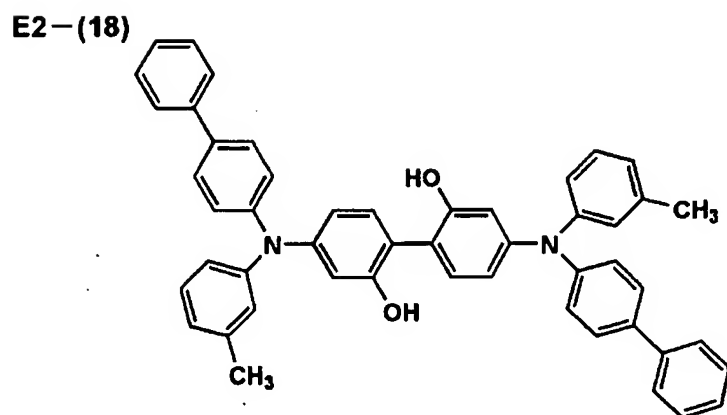
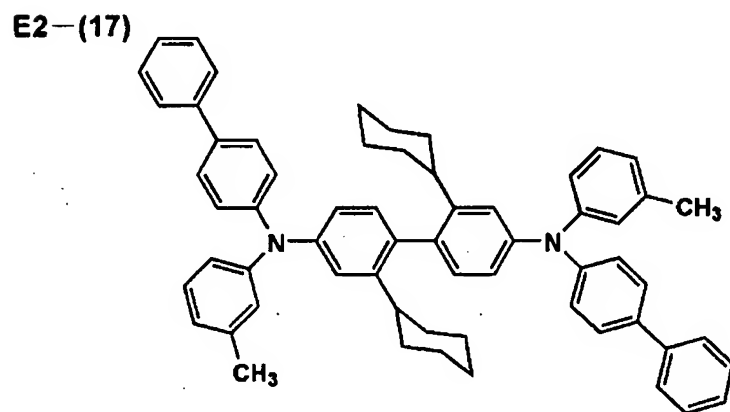
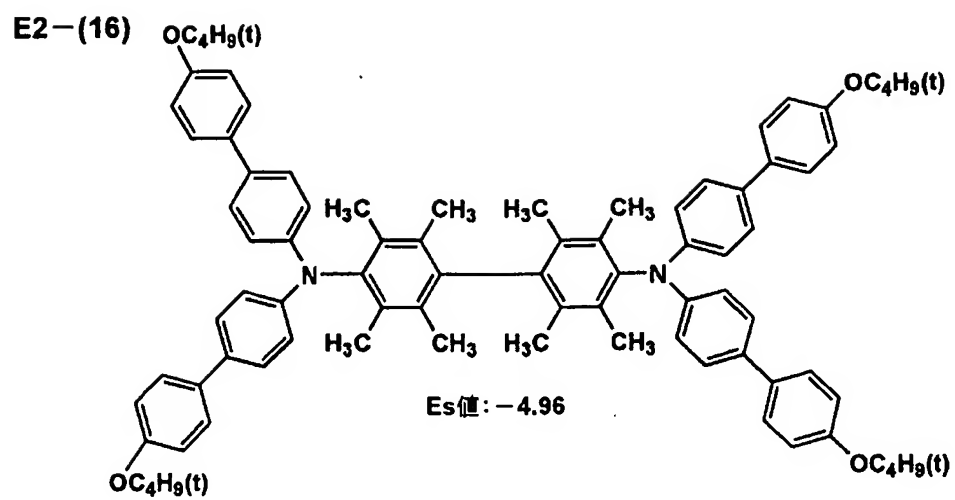


30

40

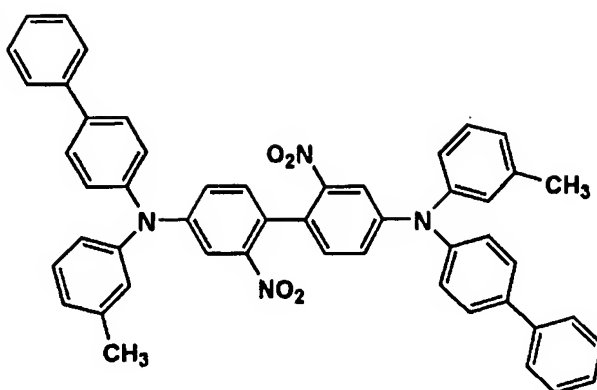
【 0 9 4 5 】

【 化 5 4 7 】



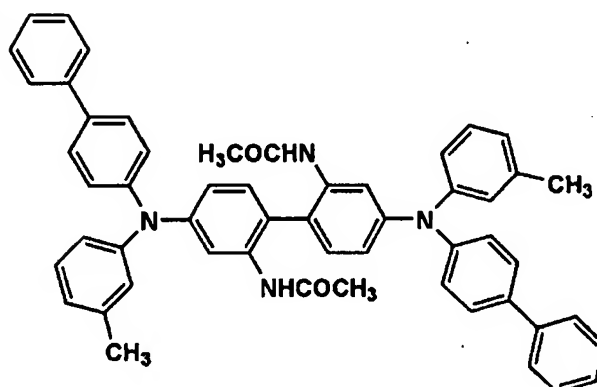
【 0 9 4 6 】  
【 化 5 4 8 】

E2-(19)



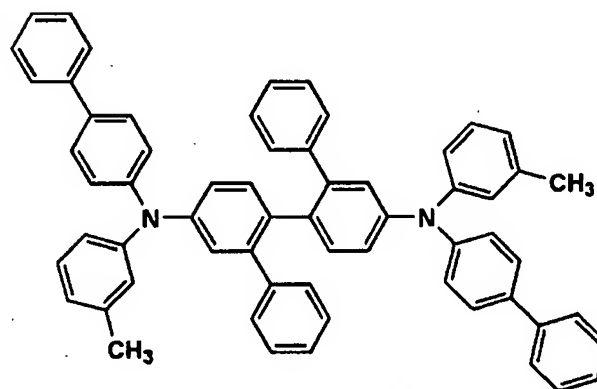
10

E2-(20)



20

E2-(21)



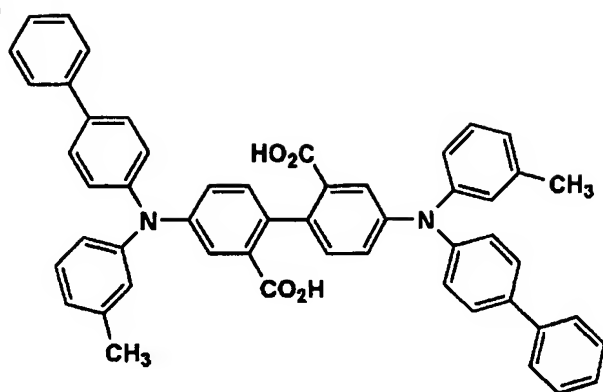
30

【 0 9 4 7 】

【 化 5 4 9 】

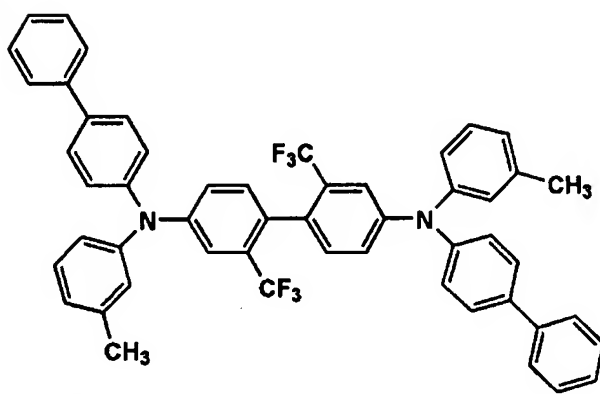
40

E2-(22)



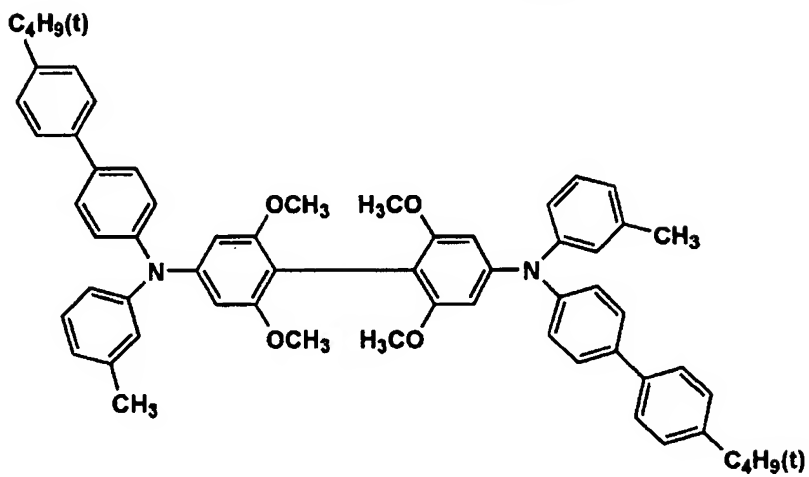
10

E2-(23)



20

E2-(24)



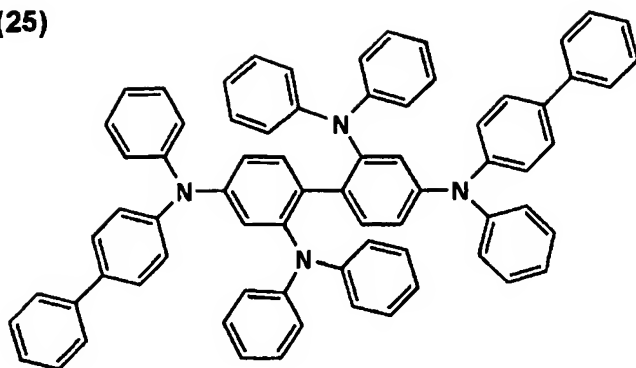
30

【 0 9 4 8 】

【 化 5 5 0 】

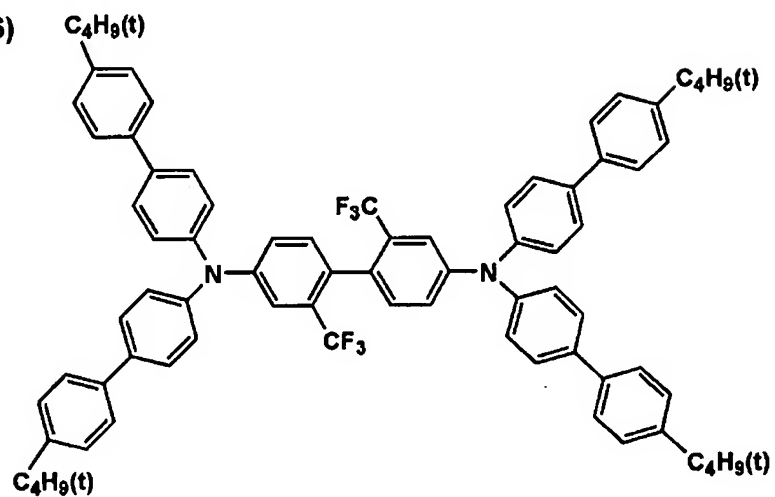
40

E2-(25)



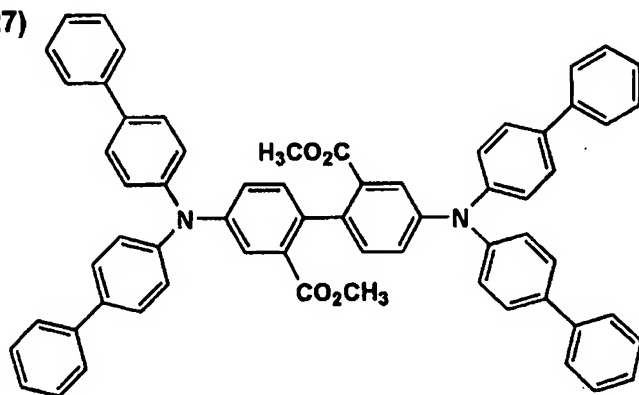
10

E2-(26)



20

E2-(27)



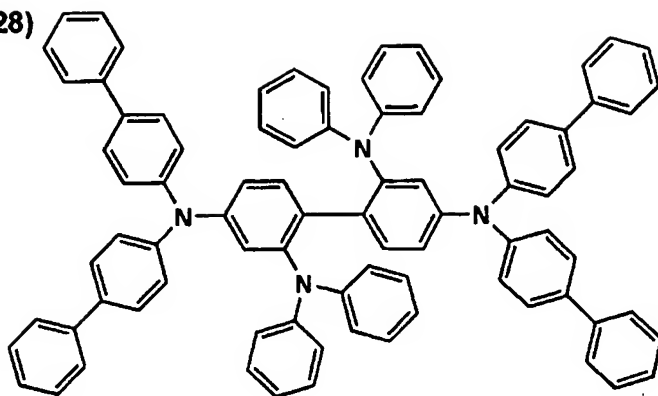
30

40

【 0 9 4 9 】

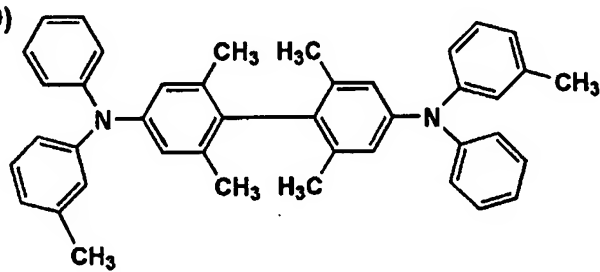
【 化 5 5 1 】

E2-(28)



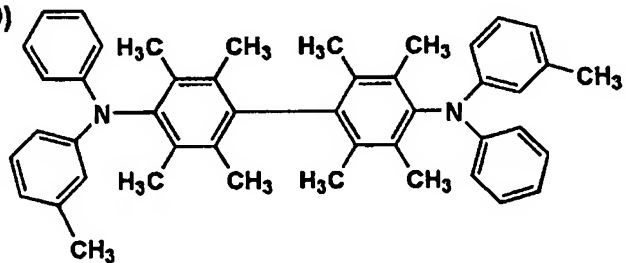
10

E2-(29)



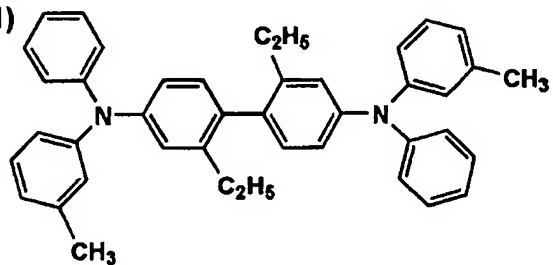
20

E2-(30)



30

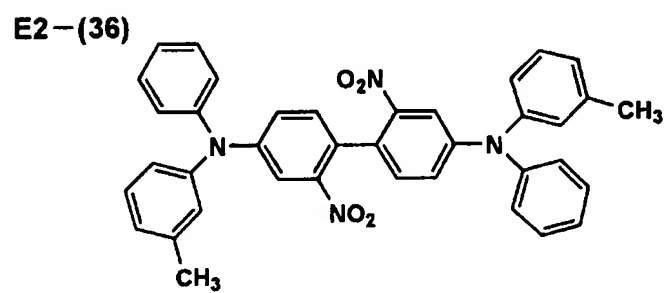
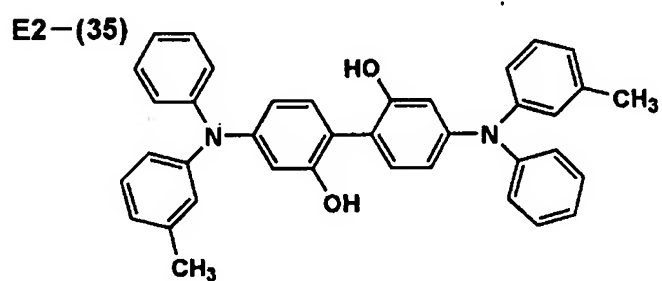
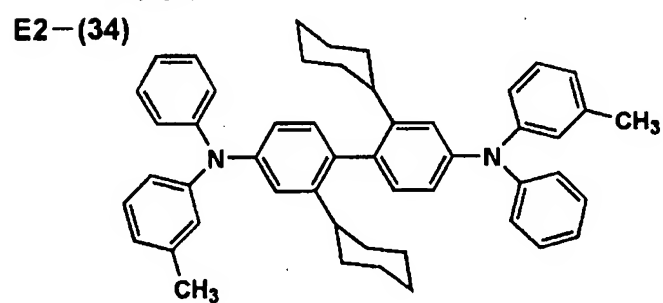
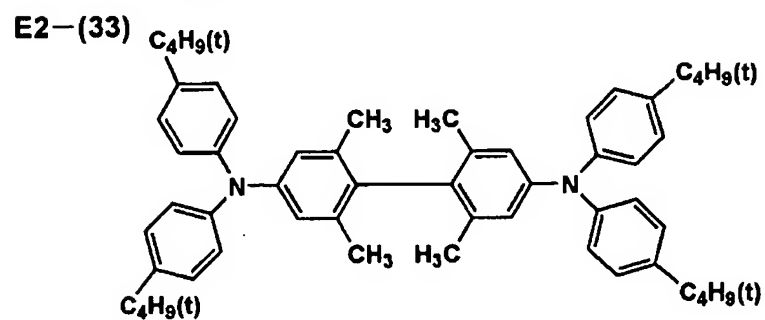
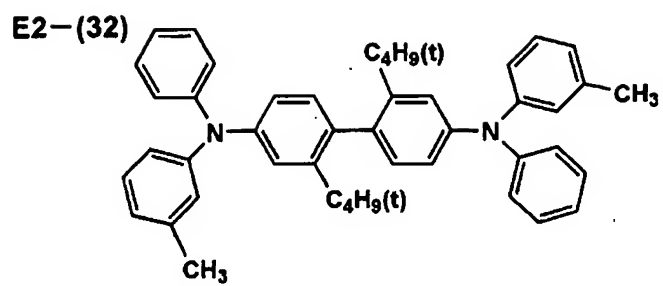
E2-(31)



40

【 0 9 5 0 】

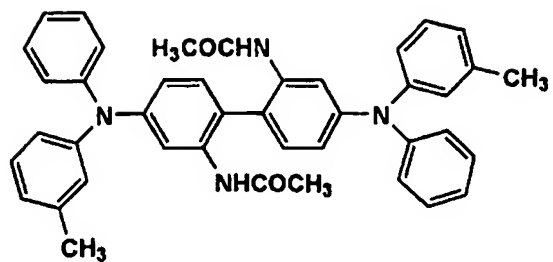
【 化 5 5 2 】



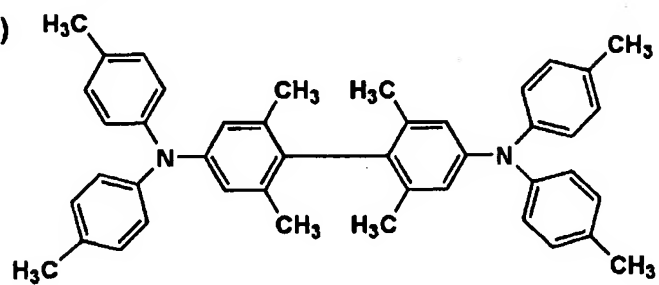
[ 0 9 5 1 ]  
[ 化 5 5 3 ]



E2-(37)

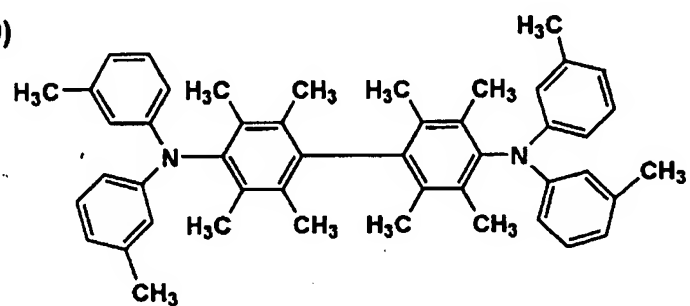


E2-(38)



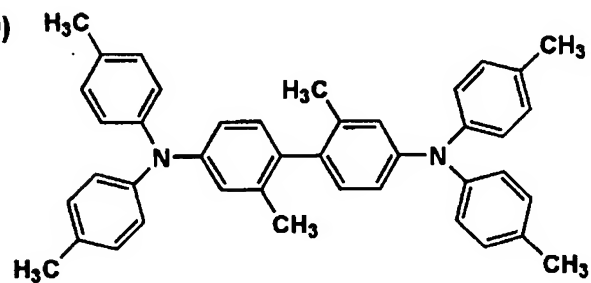
10

E2-(39)



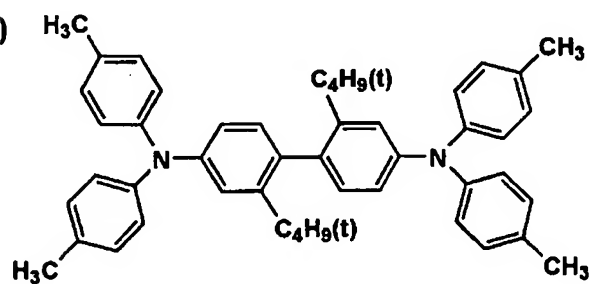
20

E2-(40)



30

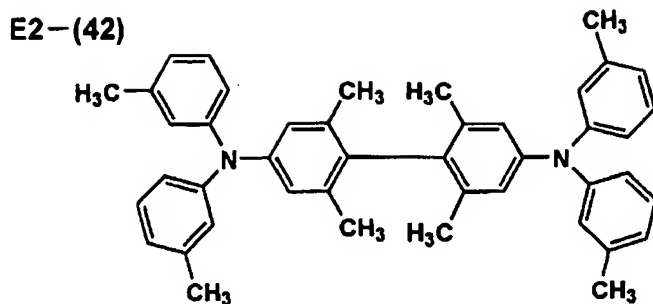
E2-(41)



40

【 0 9 5 2 】

【 化 5 5 4 】



10

## 【0953】

本発明の化合物について更に詳細に説明する。

## 【0954】

先ず、本発明において、一般式 (F1-1) ~ (F1-3) で表される化合物について説明する。式中、M<sub>0</sub> はインジウム又はガリウムを表す。又、一般式 (F1-1) ~ (F1-3) において、R<sub>1</sub> ~ R<sub>12</sub>、R<sub>21</sub> ~ R<sub>32</sub>、R<sub>41</sub> ~ R<sub>52</sub>、L<sub>1</sub> は各々独立して、水素原子、または、置換基を表す。R<sub>1</sub> ~ R<sub>12</sub>、R<sub>21</sub> ~ R<sub>32</sub>、R<sub>41</sub> ~ R<sub>52</sub>、L<sub>1</sub> が置換基を表す場合、その置換基としては、アルキル基 (例えばメチル基、エチル基、イソプロピル基、ヒドロキシエチル基、メトキシメチル基、トリフルオロメチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロ-n-ブチル基、パーフルオロ-t-ブチル基、t-ブチル基等)、シクロアルキル基 (例えばシクロペンチル基、シクロヘキシル基等)、アラルキル基 (例えばベンジル基、2-フェネチル基等)、アリール基 (例えばフェニル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等)、アルコキシ基 (例えばエトキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基等)、アリールオキシ基 (例えばフェノキシ基等)、シアノ基、アミノ基 (ジメチルアミノ基、ジアリールアミノ基)、水酸基、ハロゲン原子 (フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等) 等が挙げられる。

20

## 【0955】

これらの基はさらに置換されていてもよく、置換基としては、ハロゲン原子、トリフルオロメチル基、シアノ基、ニトロ基、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、ジベンジルアミノ基、ジアリールアミノ基、ジアルキルアミノ基等が挙げられる。

30

## 【0956】

また、R<sub>1</sub> ~ R<sub>12</sub>、R<sub>21</sub> ~ R<sub>32</sub>、R<sub>41</sub> ~ R<sub>52</sub> が置換基を表す場合、R<sub>1</sub> ~ R<sub>12</sub> の置換基どうし、R<sub>21</sub> ~ R<sub>32</sub> の置換基どうし、R<sub>41</sub> ~ R<sub>52</sub> の置換基どうしは、各々連結して環を形成してもよい。

## 【0957】

L<sub>1</sub> が置換基を表す場合、好ましくは、アリール基 (例えばフェニル基、ビフェニル基、フェナンスリル基、ナフチル基、p-トリル基、p-クロロフェニル基等) 又は複素環基である。

40

## 【0958】

前記一般式 (F1-2) 及び (F1-3) において、M<sub>1</sub> はインジウム又はガリウムを表し、L<sub>2</sub>、L<sub>3</sub> は複素環基を表す。複素環基としては、ピロリル基、ピロリジニル基、ピラゾリル基、イミダゾリル基、ピリジル基、トリアゾリル基、ベンズイミダゾリル基、ベンゾチアゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、フリル基、チエニル基、チアゾリル基、テトラゾリル基、オキサジアゾリル基、トリアゾリル基等がある。

## 【0959】

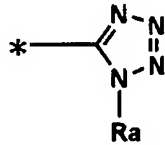
又、前記一般式 (F1-1) の L<sub>1</sub> が複素環基の場合、その複素環基として、又、一般式 (F1-2) 及び (F1-3) において L<sub>2</sub>、L<sub>3</sub> で表される複素環基として、下記一般式 (F1-A) ~ (F1-D) で表される基が好ましい。

50

【 0 9 6 0 】

【 化 5 5 5 】

## 一般式(F1-A)



10

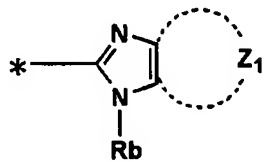
【 0 9 6 1 】

式中、R a は水素原子又は置換基を表し、\* は硫黄原子又は酸素原子との結合部位を表す。

【 0 9 6 2 】

【 化 5 5 6 】

## 一般式(F1-B)



20

【 0 9 6 3 】

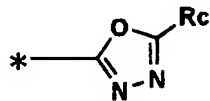
式中、R b は水素原子又は置換基を表し、Z<sub>1</sub> は環を形成するのに必要な原子群を表し、\* は硫黄原子又は酸素原子との結合部位を表す。

30

【 0 9 6 4 】

【 化 5 5 7 】

## 一般式(F1-C)



40

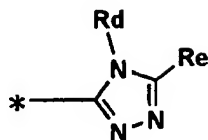
【 0 9 6 5 】

式中、R c は水素原子又は置換基を表し、\* は硫黄原子又は酸素原子との結合部位を表す。

【 0 9 6 6 】

【 化 5 5 8 】

## 一般式(F1-D)



【0967】

10

式中、Rd、Reは水素原子又は置換基を表し、\*は硫黄原子又は酸素原子との結合部位を表す。

【0968】

一般式(F1-A)～(F1-D)において、Ra、Rb、Rc、Rd、Reは水素原子又は置換基を表す。Ra、Rb、Rc、Rd、Reが置換基を表す場合、その置換基としては一般式(F1-1)～(F1-3)において説明したものと同義であり、好ましくは、アルキル基、アリール基である。

【0969】

又、これらの基はさらに置換されていてもよい。

【0970】

20

Z<sub>1</sub>で表される環を形成するに必要な原子群としては、3員以上の環であれば特に限定されるものではなく、炭素原子と水素原子のみで構成された炭化水素環でもよく、またヘテロ原子を含んでいる複素環でも良い。好ましくは5～7員の環である。また、これらは任意の置換基を複数個それぞれ独立に有していてもよい。

【0971】

一般式(F1-4)、(F1-5)で表される化合物について説明する。式中、M<sub>2</sub>、M<sub>3</sub>はアルミニウム、インジウム又はガリウムを表し、M<sub>4</sub>、M<sub>5</sub>はインジウム又はガリウムを表す。Ra<sub>1</sub>～Ra<sub>24</sub>、Rb<sub>1</sub>～Rb<sub>24</sub>は各々独立して、水素原子、または、置換基を表す。Ra<sub>1</sub>～Ra<sub>24</sub>、Rb<sub>1</sub>～Rb<sub>24</sub>が置換基を表す場合、その置換基としては一般式(F1-1)～(F1-3)において説明したものと同義である。好ましくは、アルキル基、アリール基である。これらの基はさらに置換されていてもよい。

30

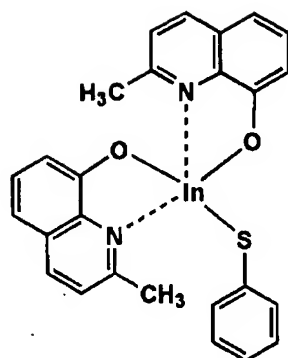
【0972】

また、Ra<sub>1</sub>～Ra<sub>24</sub>、Rb<sub>1</sub>～Rb<sub>24</sub>が置換基を表す場合、Ra<sub>1</sub>～Ra<sub>24</sub>の置換基どうし、Rb<sub>1</sub>～Rb<sub>24</sub>の置換基同士は、各々連結して環を形成してもよい。以下に、本発明の化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。

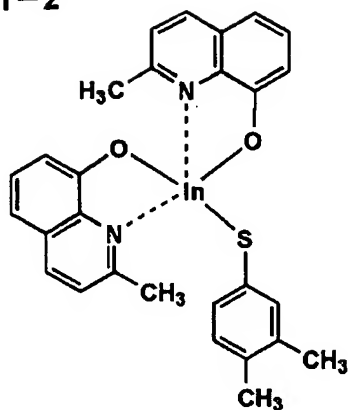
【0973】

【化559】

F1-1-1

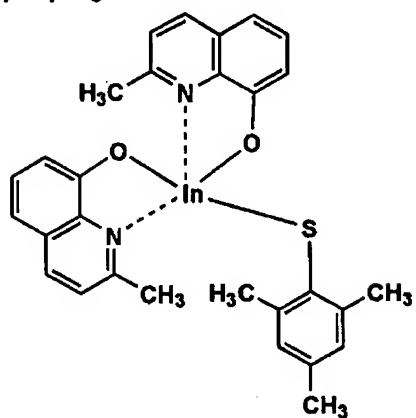


F1-1-2

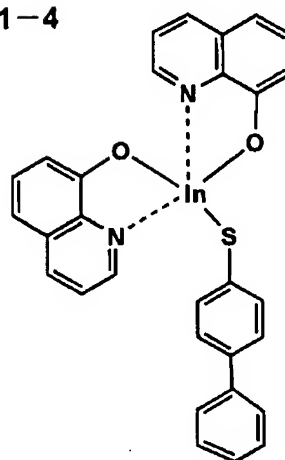


10

F1-1-3

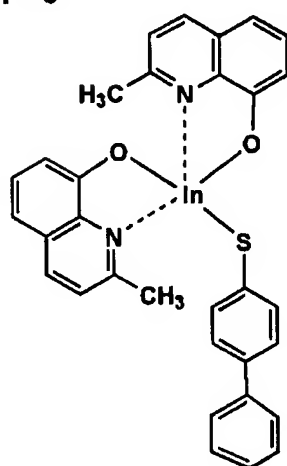


F1-1-4

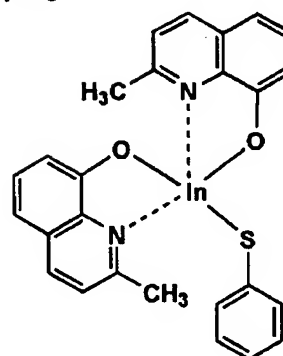


20

F1-1-5



F1-1-6



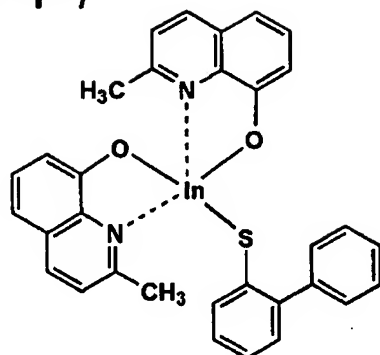
30

40

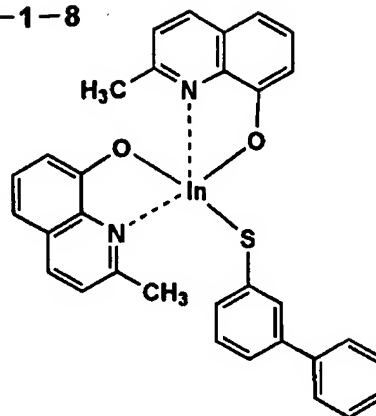
【 0 9 7 4 】

【 化 5 6 0 】

F1-1-7

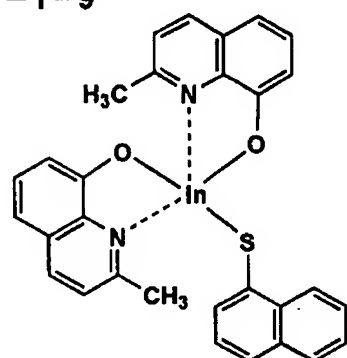


F1-1-8

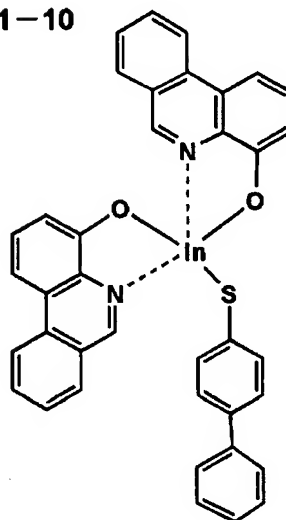


10

F1-1-9

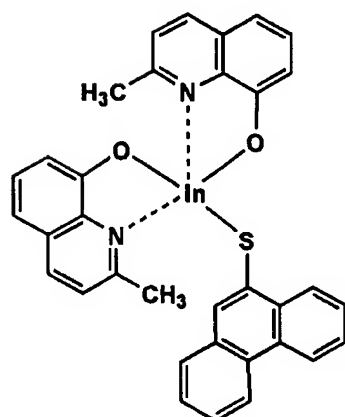


F1-1-10

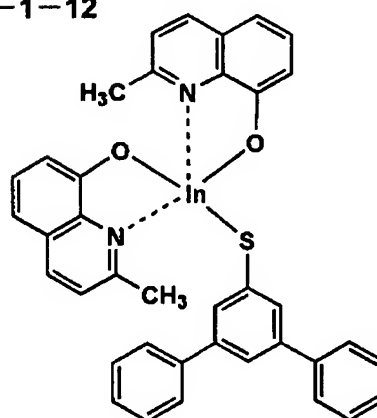


20

F1-1-11



F1-1-12



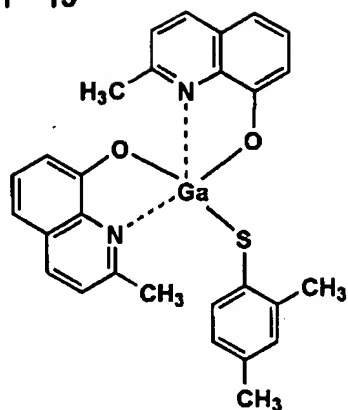
30

40

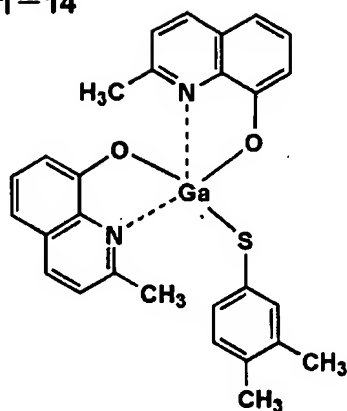
【 0 9 7 5 】

【 化 5 6 1 】

F1-1-13

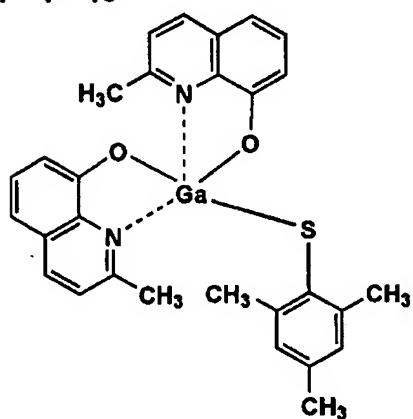


F1-1-14

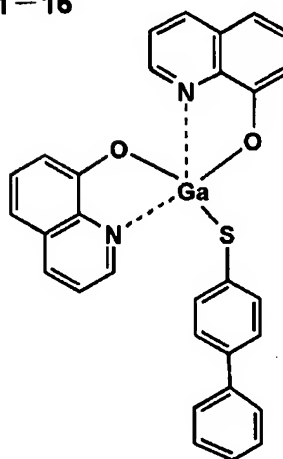


10

F1-1-15

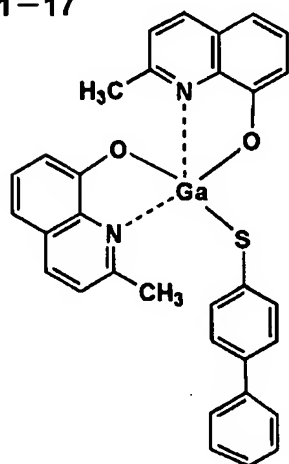


F1-1-16

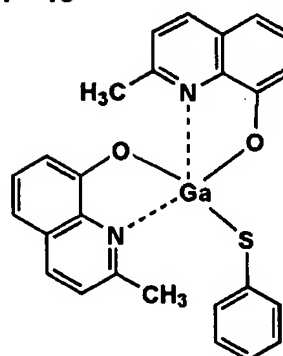


20

F1-1-17



F1-1-18



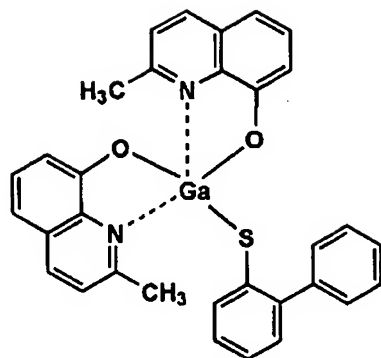
30

40

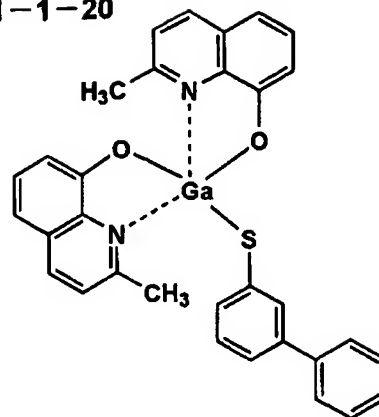
【 0 9 7 6 】

【 化 5 6 2 】

F1-1-19

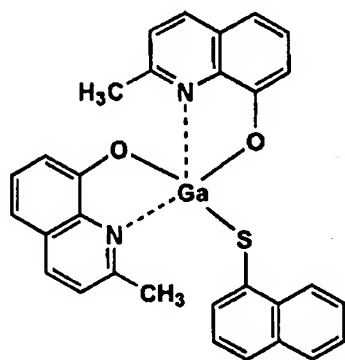


F1-1-20

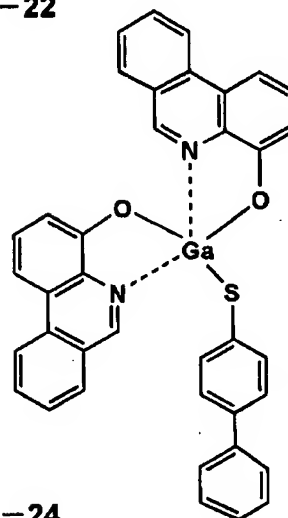


10

F1-1-21

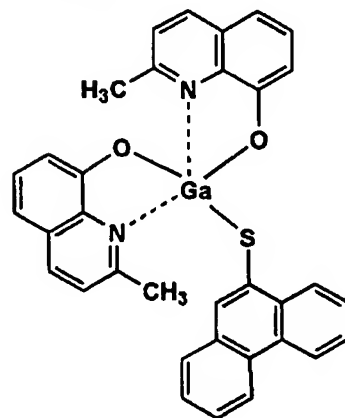


F1-1-22

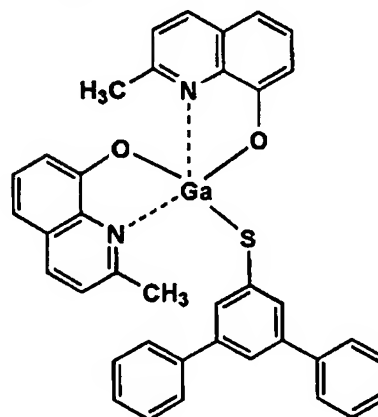


20

F1-1-23



F1-1-24



30

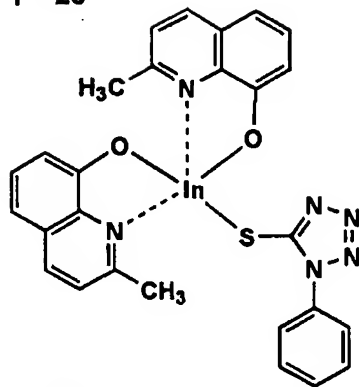
40

【 0 9 7 7 】

【 化 5 6 3 】

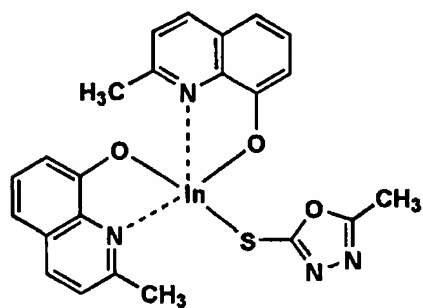


**F1-1-26**



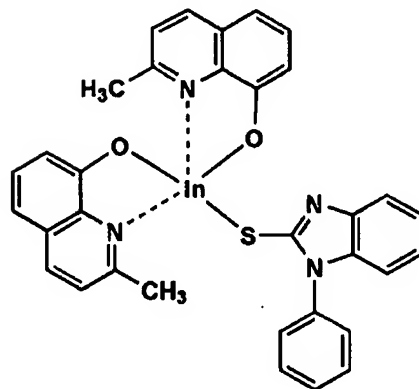
10

**F1-1-28**



20

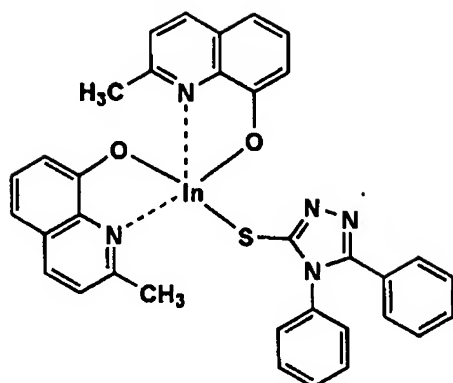
**F1-1-30**



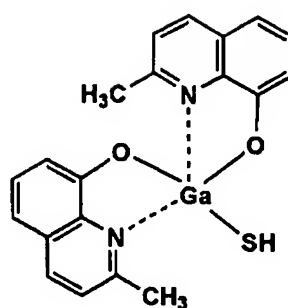
30

40

F1-1-31

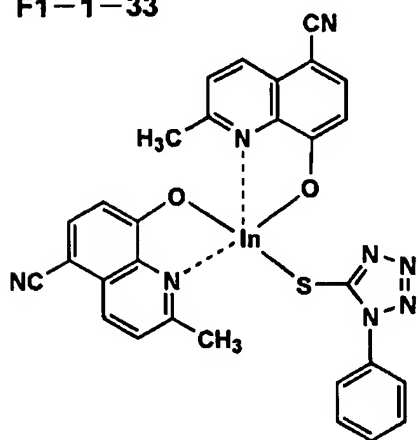


F1-1-32

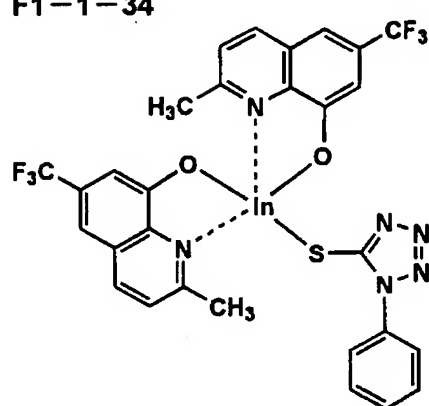


10

F1-1-33



F1-1-34



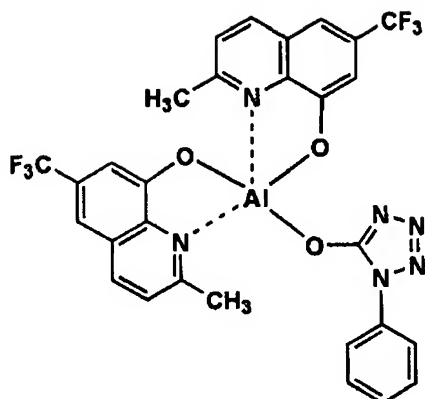
20

【 0 9 7 9 】

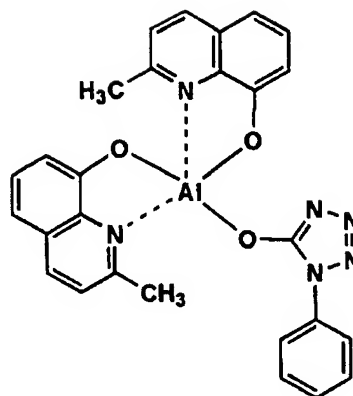
【 化 5 6 5 】

30

F1-2-1

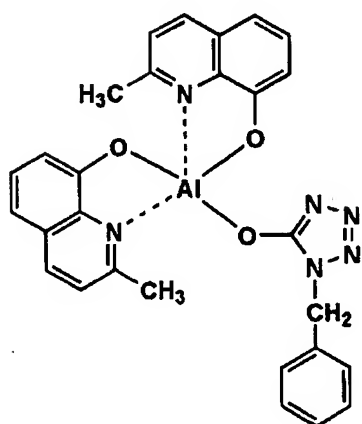


F1-2-2

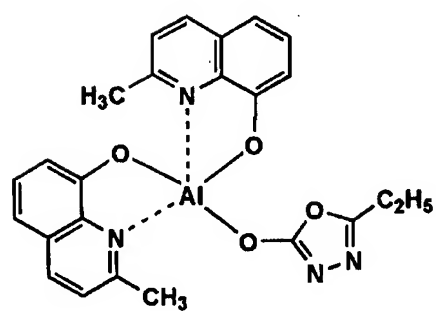


10

F1-2-3



F1-2-4



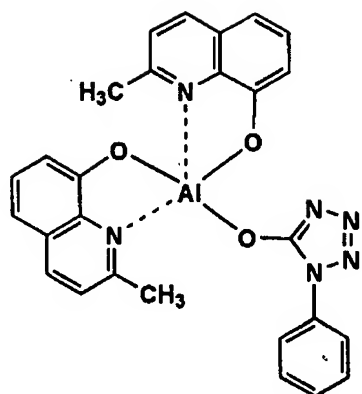
20

30

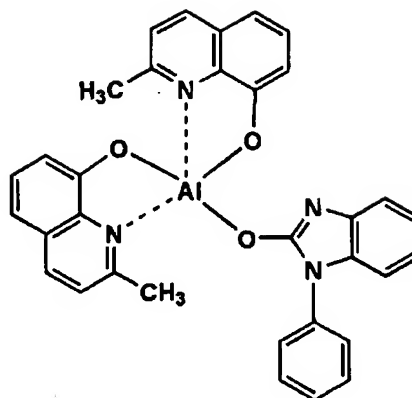
【 0 9 8 0 】

【 化 5 6 6 】

F1-2-5

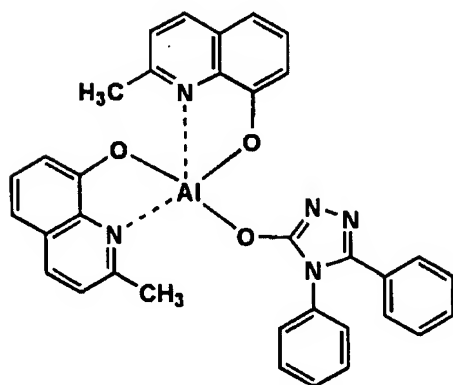


F1-2-6

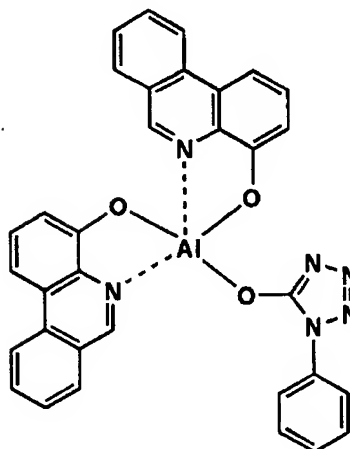


10

F1-2-7



F1-2-8



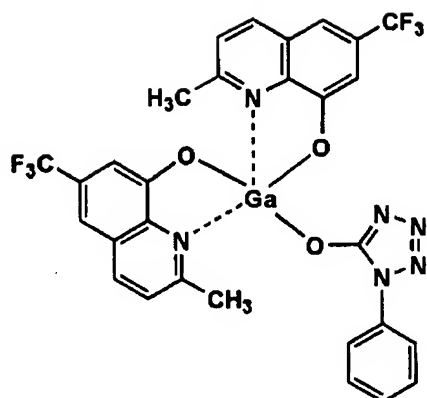
20

30

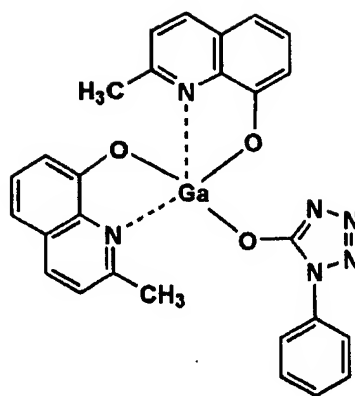
【 0 9 8 1 】

【 化 5 6 7 】

F1-3-1

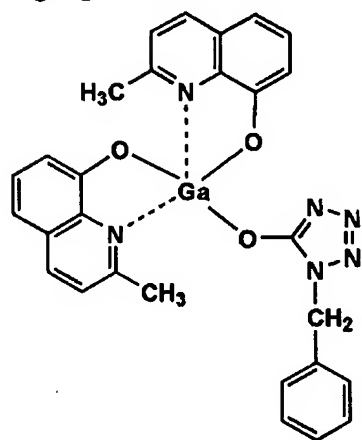


F1-3-2

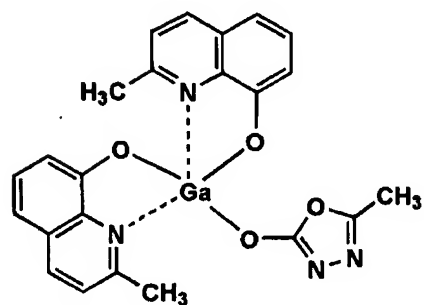


10

F1-3-3



F1-3-4



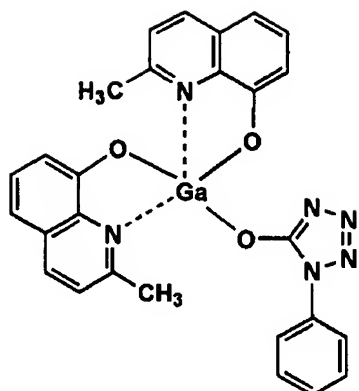
20

30

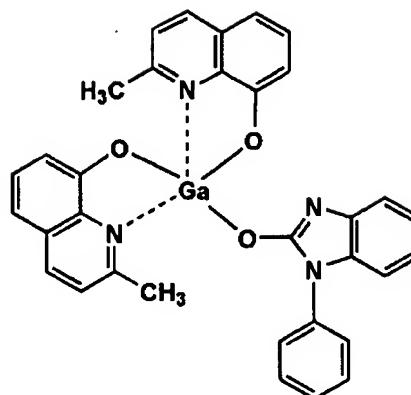
【 0 9 8 2 】

【 化 5 6 8 】

F1-3-5

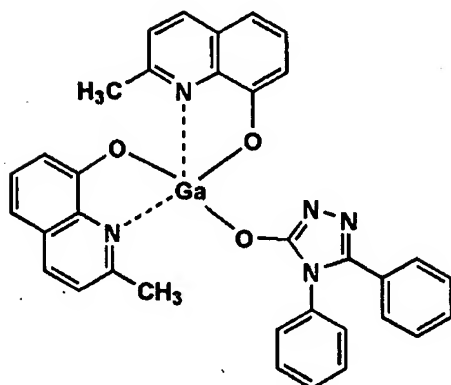


F1-3-6

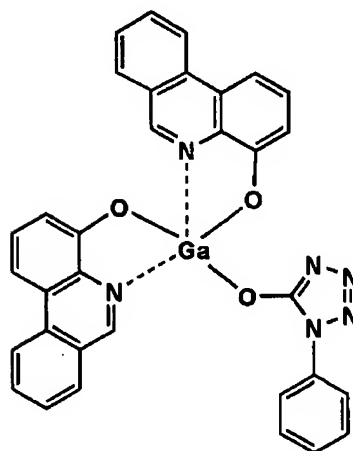


10

F1-3-7



F1-3-8

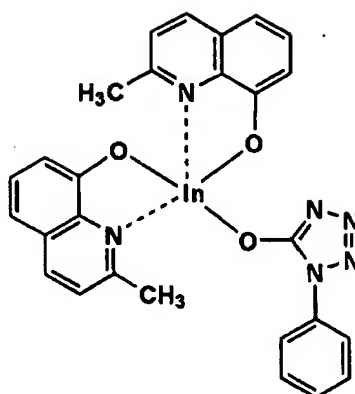


20

30

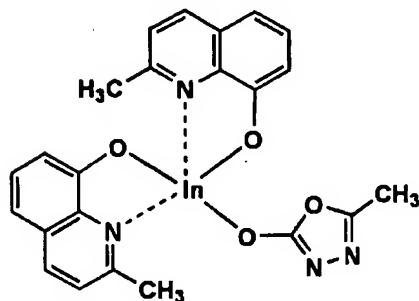
【0983】  
【化569】

**F1-3-10**



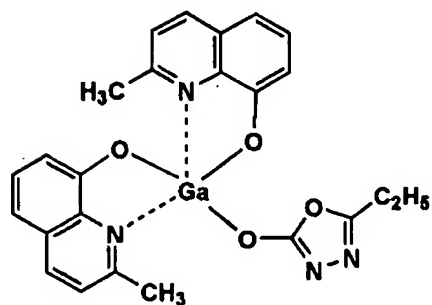
10

**F1-3-12**



20

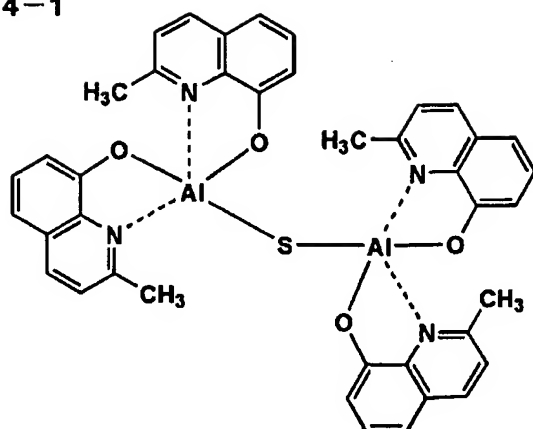
30



40

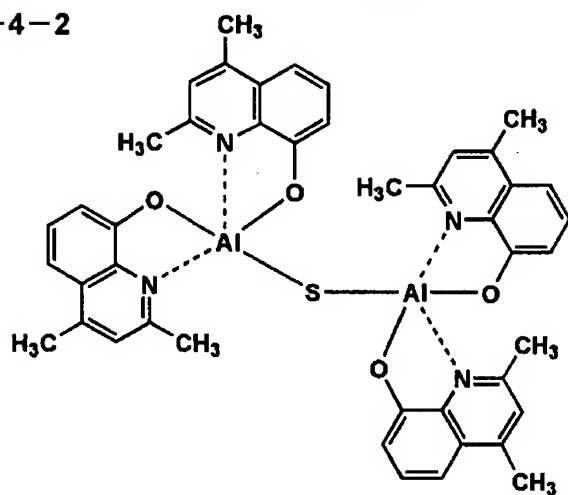
【 0 9 8 4 】  
【 化 5 7 0 】

F1-4-1



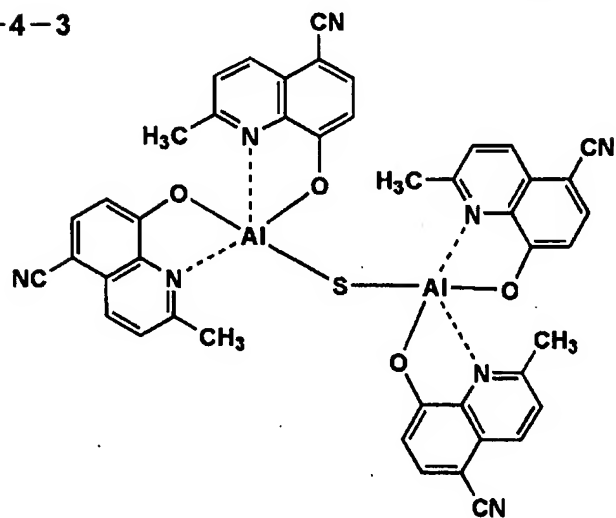
10

F1-4-2



20

F1-4-3



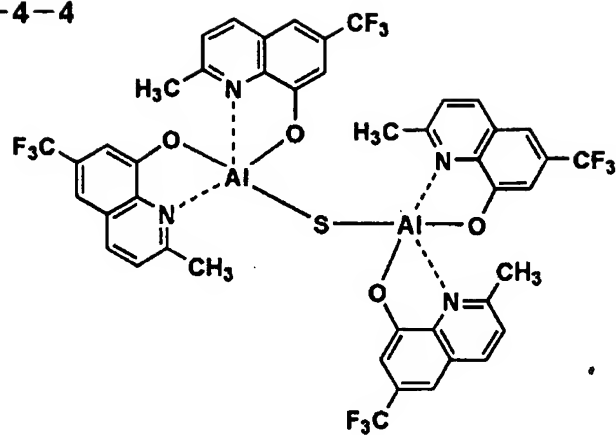
30

40

[ 0 9 8 5 ]  
[ 化 5 7 1 ]

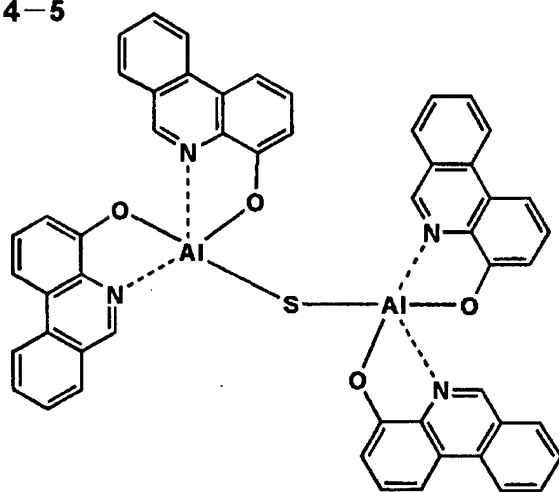


F1-4-4



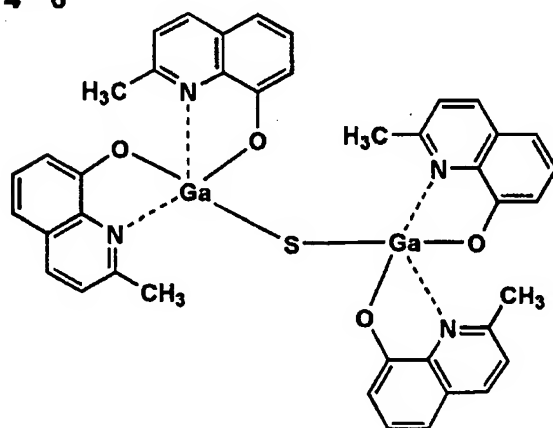
10

F1-4-5



20

F1-4-6



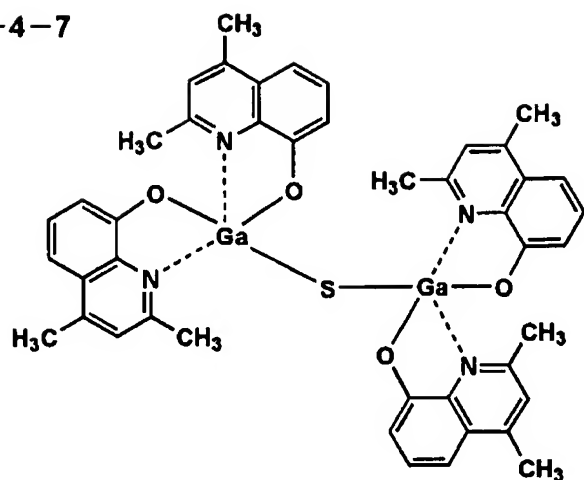
30

40

【 0 9 8 6 】

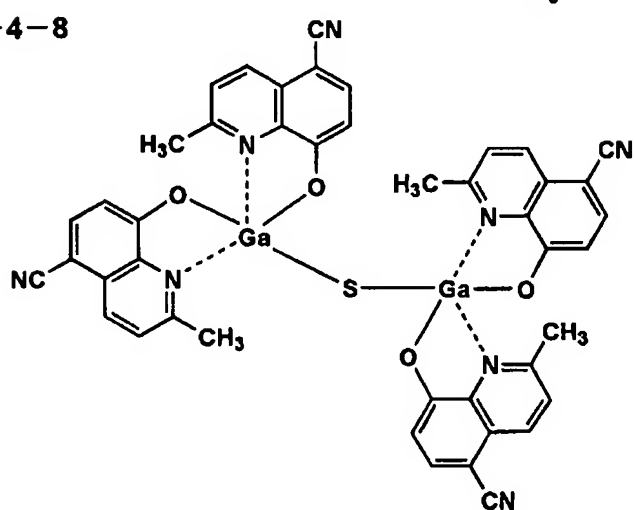
【 化 5 7 2 】

F1-4-7



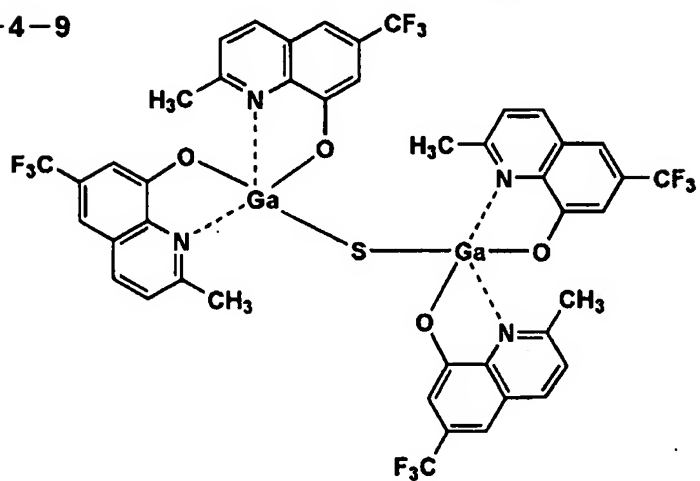
10

F1-4-8



20

F1-4-9



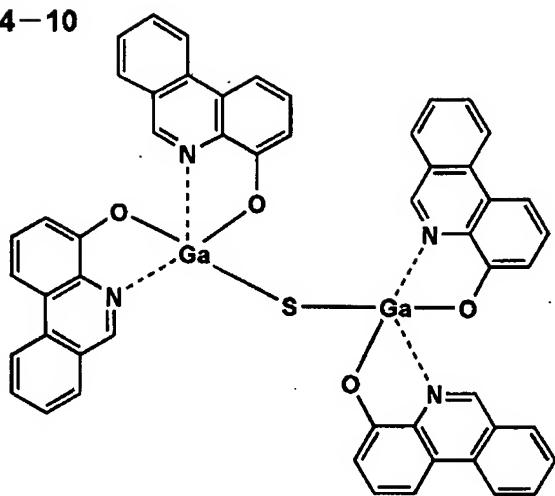
30

40

【 0 9 8 7 】

【 化 5 7 3 】

F1-4-10



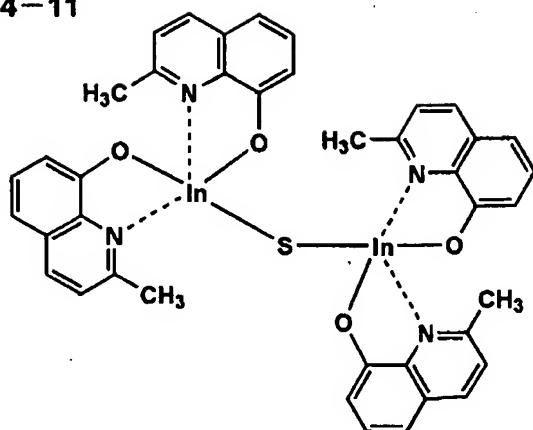
10

【 0 9 8 8 】

【 化 5 7 4 】

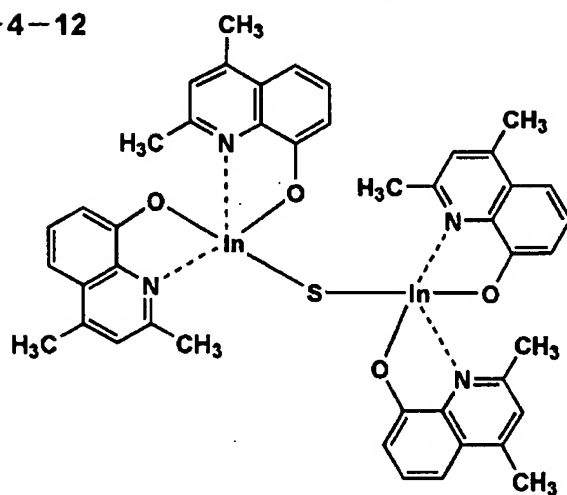
20

F1-4-11



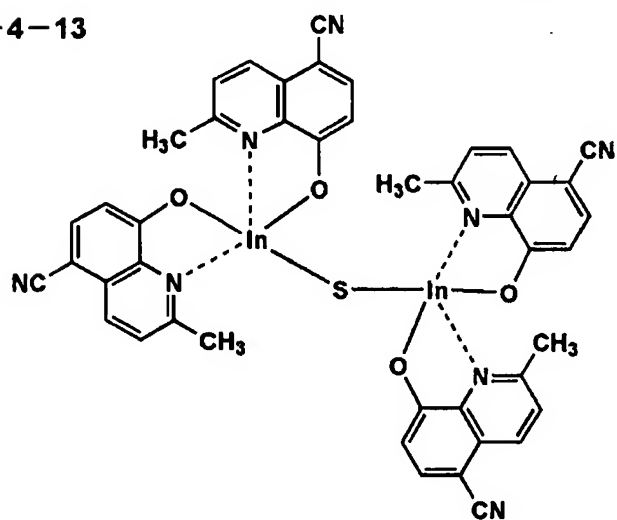
10

F1-4-12



20

F1-4-13



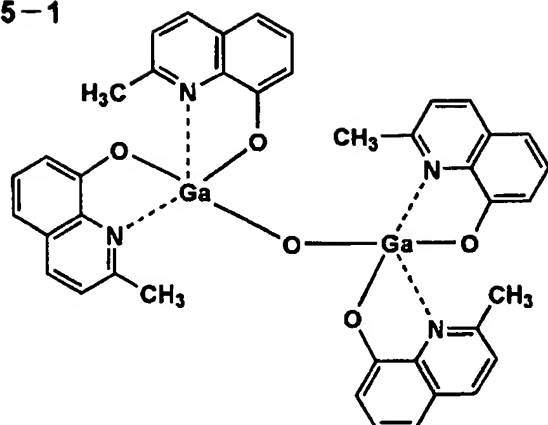
30

40

【 0 9 8 9 】

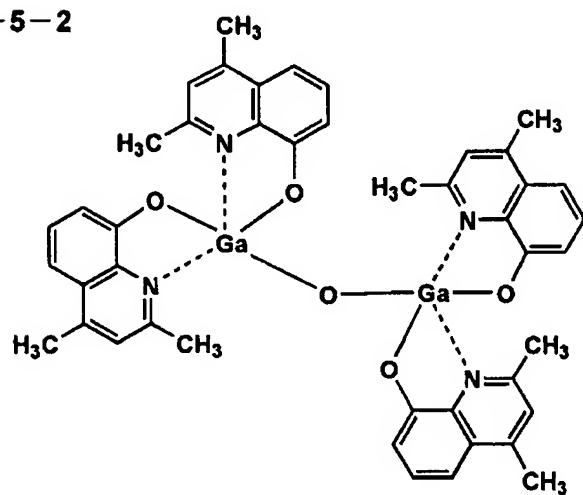
【 化 5 7 5 】

F1-5-1



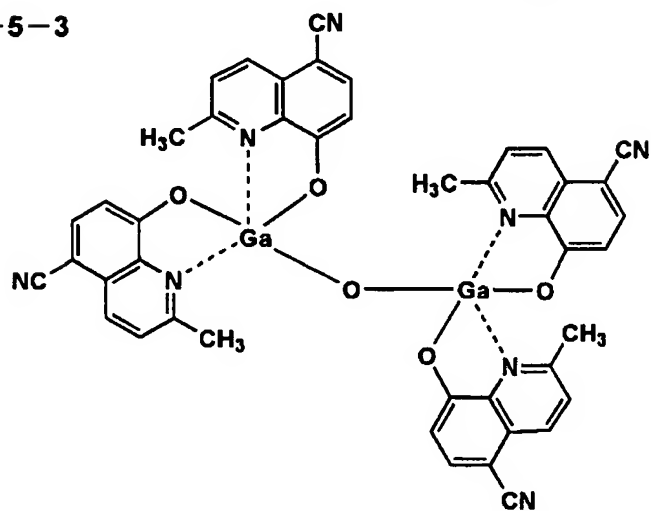
10

F1-5-2



20

F1-5-3

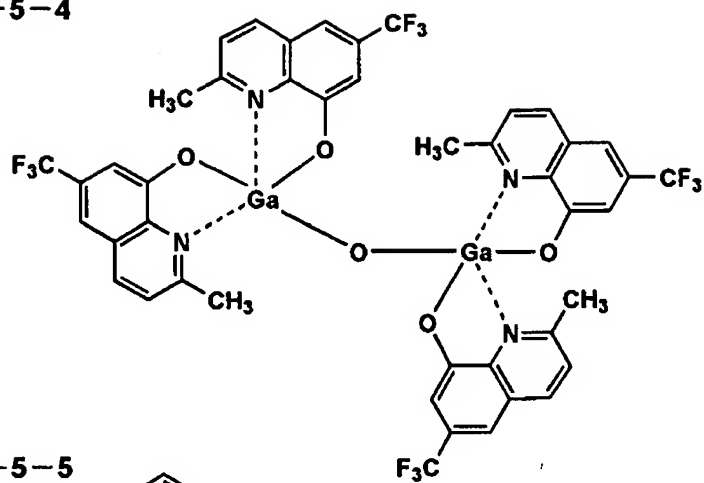


30

40

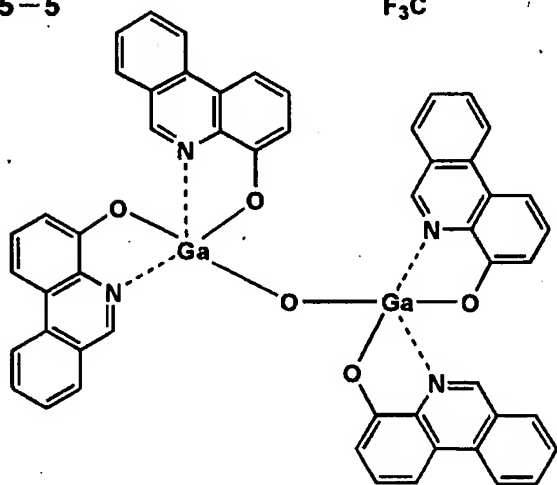
[ 0 9 9 0 ]  
[ 化 5 7 6 ]

F1-5-4



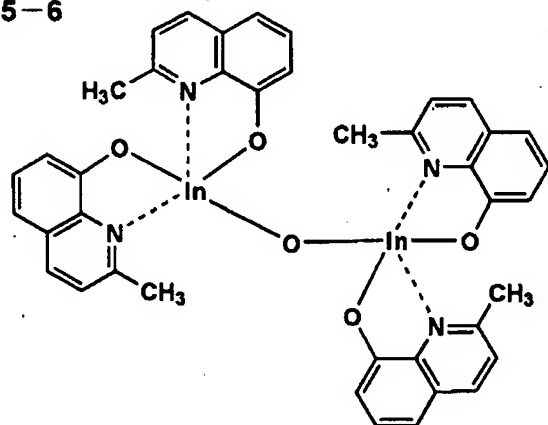
10

F1-5-5



20

F1-5-6

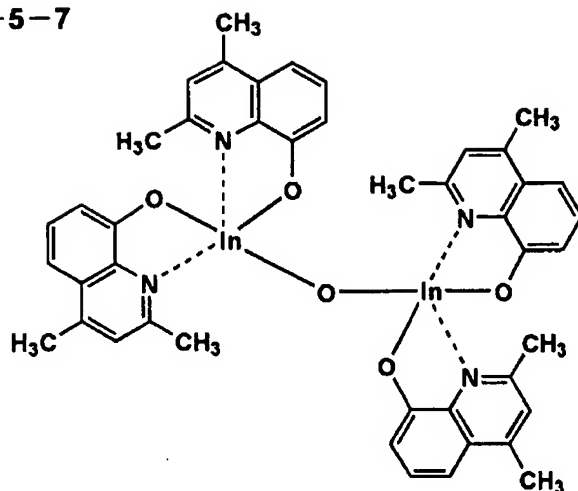


30

40

[0991]  
[化577]

F1-5-7



10

## 【0992】

本発明の化合物の代表的製造例を以下に示す。その他の化合物についても同様の方法により製造することができる。

20

## 【0993】

(合成例)

2-メチル-8-キノリノールの試料0.8gを、1.0gのインジウムイソプロポキシドを含む無水エタノール溶液40ml中で加熱攪拌した。約30分後、その溶液をセライトろ過して不溶物を除去した。ろ液に、更に2-メチル-8-キノリノールの試料0.8gとチオフェノール1.1gを含有するエタノール溶液を加え、4時間攪拌しながら加熱還流して室温に戻し、エタノールで洗浄した。風乾後の固体質量は、1.0g(収率は37%)となった。

## 【0994】

マスペクトルにより化合物(F1-1-1)であることを確認した。

30

## 【0995】

本発明に係る一般式(G1-1)～(G1-5)で表される特定構造を有する金属錯体化合物について説明する。

## 【0996】

前記一般式(G1-1)において、Z<sub>11</sub>は炭素原子および窒素原子とともに複素芳香族環を形成するのに必要な原子群を表し、Z<sub>12</sub>は炭素原子とともに非芳香族環を形成するのに必要な原子群を表し、Mは金属を表す。Z<sub>11</sub>で形成される芳香族環としては、例えば、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンズイミダゾール環、ベンズチアゾール環、ベンズオキサゾール環、キナゾリン環、フタラジン環等が挙げられる。Z<sub>12</sub>で形成される非芳香族環としては、例えば、以下に記載の環が挙げられる。

40

## 【0997】

## 【化578】

R-1



R-2



R-3



R-4



R-5



R-6



10

## 【0998】

一般式 (G 1-1) において、好ましくは  $Z_{1,2}$  で表される非芳香環が、R-2 または R-6 である。

## 【0999】

次に、一般式 (G 1-2) について説明する。

## 【1000】

一般式 (G 1-2) において、 $Z_{2,1}$  および  $Z_{2,2}$  は、各々炭素原子および窒素原子とともに芳香環を形成するのに必要な原子群を表し、M は金属を表す。 $Z_{2,1}$  で形成される芳香環は、前記  $Z_{1,1}$  と同様の芳香環が挙げられ、 $Z_{2,2}$  で形成される芳香環としては、例えば、ピロール環、ピラゾール環、イミダゾール環、トリアゾール環、インドール環、ベンズイミダゾール環等が挙げられる。好ましくは、ピロール環、トリアゾール環の時である。

20

## 【1001】

次に、一般式 (G 1-3) について説明する。

## 【1002】

一般式 (G 1-3) において、 $Z_{3,1}$  は炭素原子および窒素原子とともに芳香族環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Z_{3,2}$  は炭素原子とともに芳香族 5 員環を形成するのに必要な、炭素、窒素または酸素原子により構成される原子群を表し、M は金属を表す。 $Z_{3,1}$  で形成される芳香環としては前記  $Z_{1,1}$  と同様の芳香環が挙げられ、 $Z_{3,2}$  で形成される芳香族 5 員環としては、例えば、ピロール環、フラン環、イミダゾール環、ピラゾール環、オキサゾール環、オキサジアゾール環等を挙げることができ、好ましくは含窒素芳香環であり、より好ましくは窒素または酸素原子が複数個含まれる含窒素芳香環である。

30

## 【1003】

次に、一般式 (G 1-4) について説明する。

## 【1004】

一般式 (G 1-4) において、 $Z_{4,1}$  は炭素原子および窒素原子とともに環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Z_{4,2}$  は炭素原子とともに環を形成するのに必要な原子群を表し、M は金属を表す。 $Z_{4,1}$  で形成される芳香環は、前記  $Z_{1,1}$  と同様の芳香環が挙げられ、 $Z_{4,2}$  で形成される芳香環は、芳香環でも非芳香環でもかまわないが、好ましくは非芳香環である。

40

## 【1005】

次に、一般式 (G 1-5) について説明する。

## 【1006】

一般式 (G 1-5) において、 $Z_{5,1}$  は炭素原子および窒素原子とともに複素芳香族環を形成するのに必要な原子群を表し、 $Z_{5,2}$  は炭素原子とともにアズレン環を形成するのに必要な原子群を表し、M は金属を表す。 $Z_{5,1}$  で形成される芳香環は  $Z_{1,1}$  と同様の芳香

50



環が挙げられる。

【1007】

上記説明した一般式 (G 1-1) ~ (G 1-5) において、 $Z_{11}$ 、 $Z_{12}$ 、 $Z_{21}$ 、 $Z_{22}$ 、 $Z_{31}$ 、 $Z_{32}$ 、 $Z_{41}$ 、 $Z_{42}$ 、 $Z_{51}$  および  $Z_{52}$  によって形成される環は、更に置換基を有していても良く、また、置換基同士が結合して、更に環を形成しても良い。また、一般式 (G 1-1) ~ (G 1-5) において、Mは元素の周期律表でVIII属の金属であることが好ましく、より好ましくはMがイリジウム、オスミウムまたは白金であり、最も好ましくはMがイリジウムである。

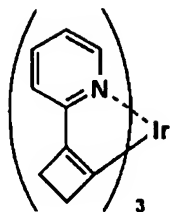
【1008】

以下に、一般式 (G 1-1) ~ (G 1-5) で表される化合物の具体例を挙げるが、本発明は、これらに限定されるものではない。 10

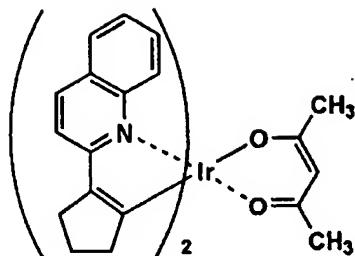
【1009】

【化579】

G1-1-1

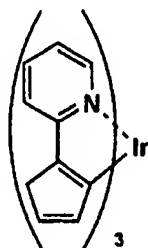


G1-1-2

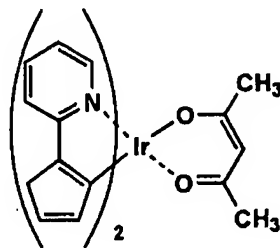


10

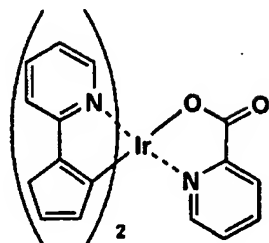
G1-1-3



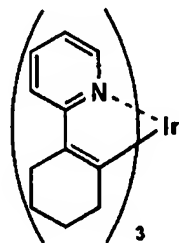
G1-1-4



G1-1-5

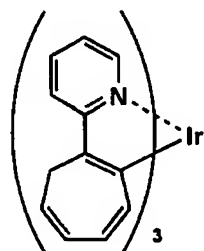


G1-1-6

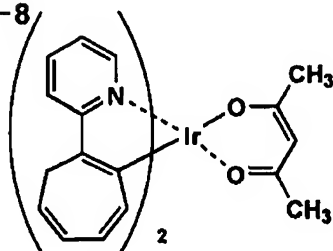


20

G1-1-7



G1-1-8

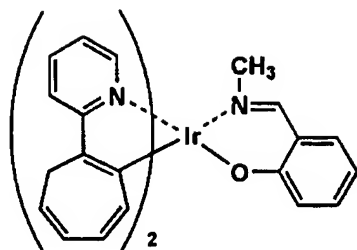


30

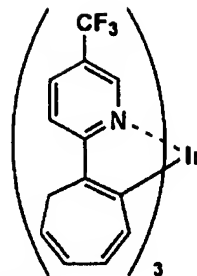
【1010】  
【化580】

40

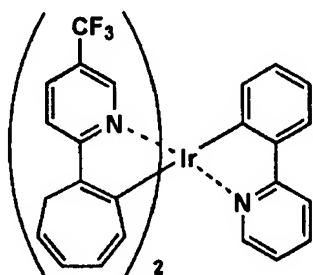
G1-1-9



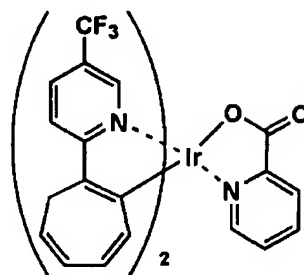
G1-1-10



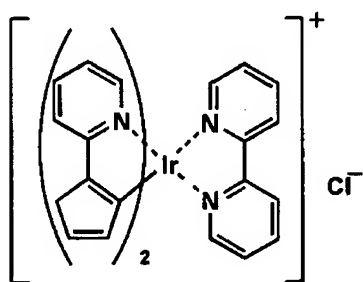
G1-1-11



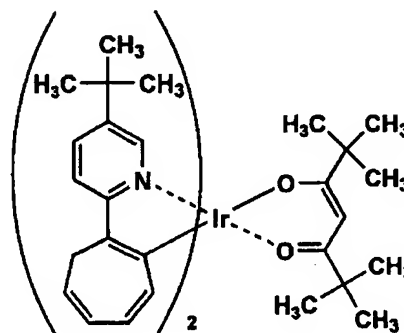
G1-1-12



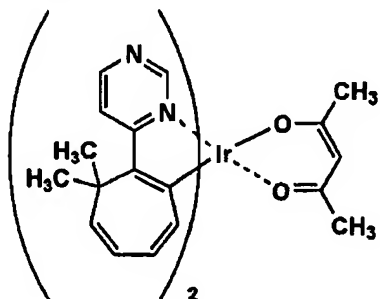
G1-1-13



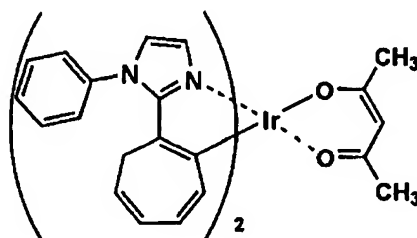
G1-1-14



G1-1-15



G1-1-16



[ 1 0 1 1 ]  
[ 化 5 8 1 ]

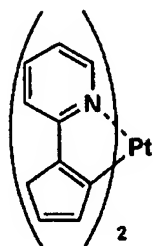
10

20

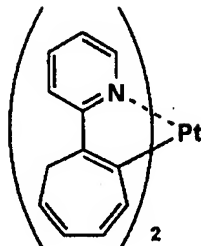
30

40

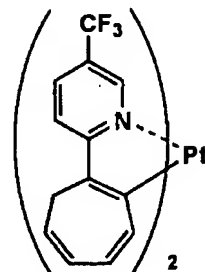
G1-1-17



G1-1-18

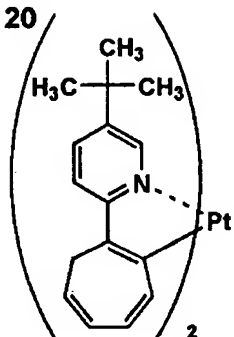


G1-1-19

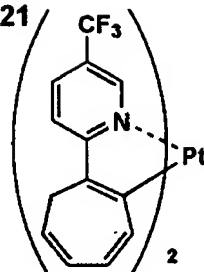


10

G1-1-20

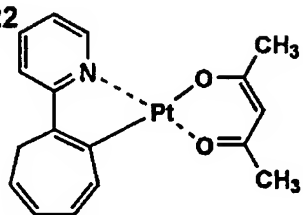


G1-1-21

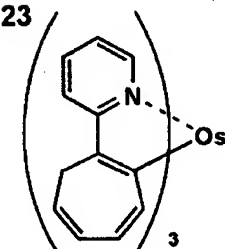


20

G1-1-22

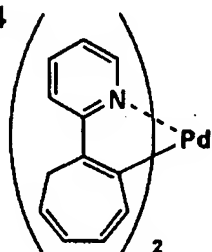


G1-1-23

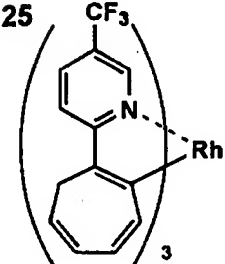


30

G1-1-24



G1-1-25

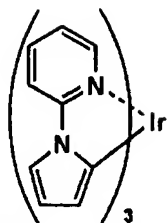


40

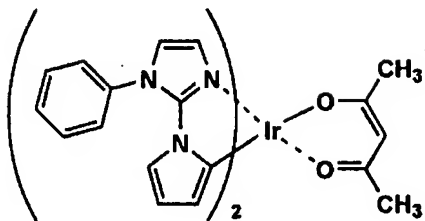
【 1 0 1 2 】

【 化 5 · 8 2 】

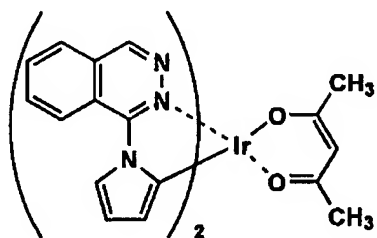
G1-2-1



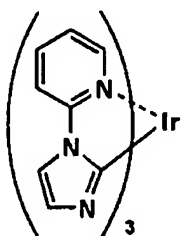
G1-2-3



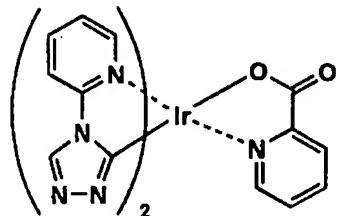
G1-2-5



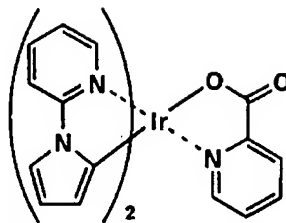
G1-2-7



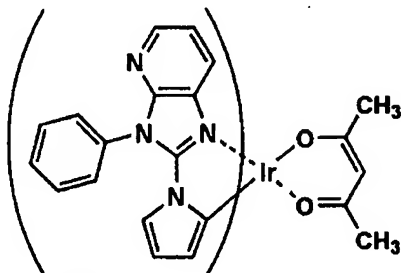
G1-2-9



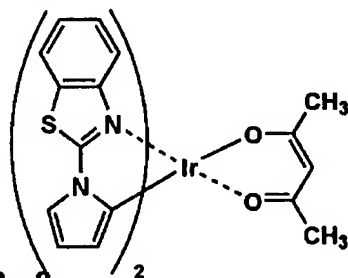
G1-2-2



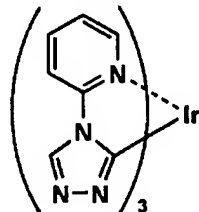
G1-2-4



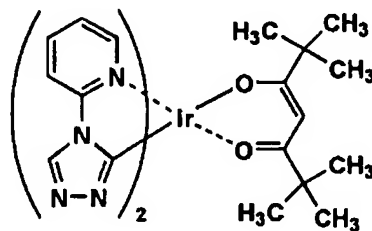
G1-2-6



G1-2-8



G1-2-10



10

20

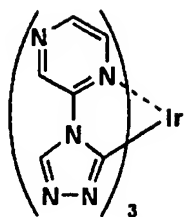
30

40

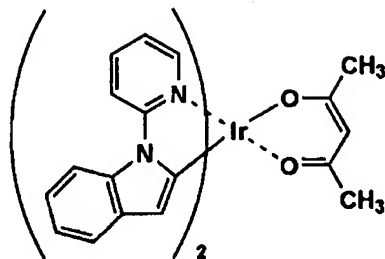
【 1 0 1 3 】

【 化 5 8 3 】

G1-2-11

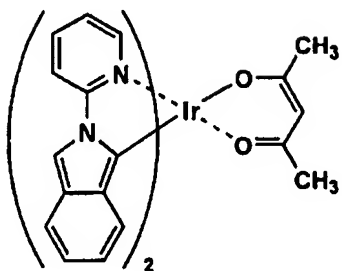


G1-2-12

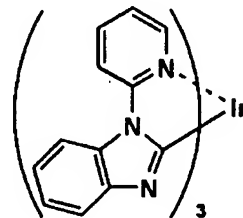


10

G1-2-13

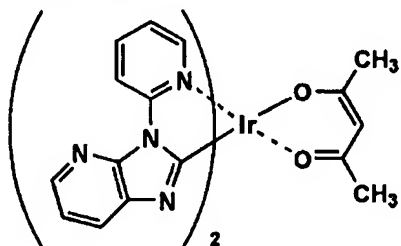


G1-2-14

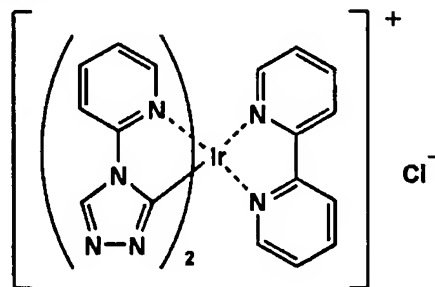


20

G1-2-15

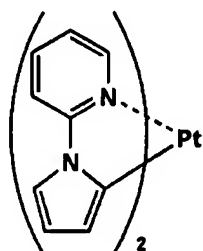


G1-2-16

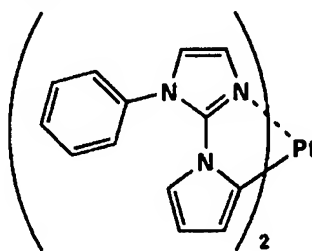


30

G1-2-17



G1-2-18

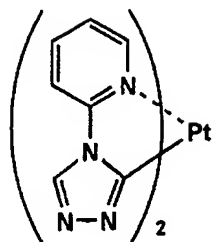


40

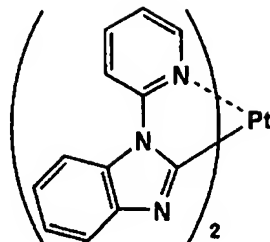
【 1 0 1 4 】

【 化 5 8 4 】

G1-2-19

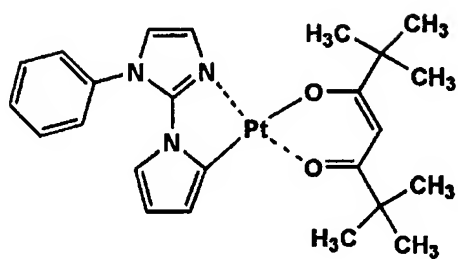


G1-2-20

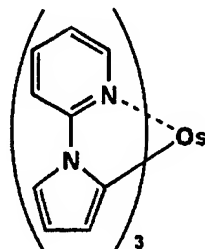


10

G1-2-21

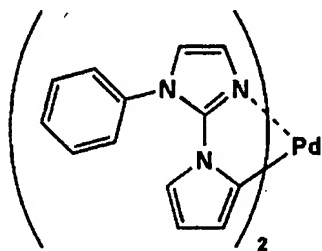


G1-2-22

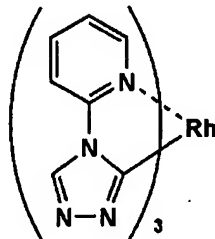


20

G1-2-23



G1-2-24

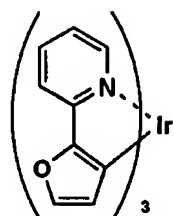


30

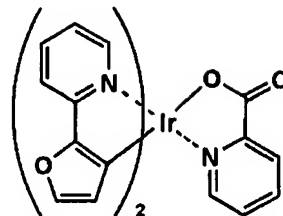
【 1 0 1 5 】

【 化 5 8 5 】

G1-3-1

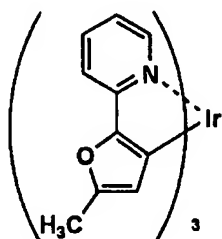


G1-3-2

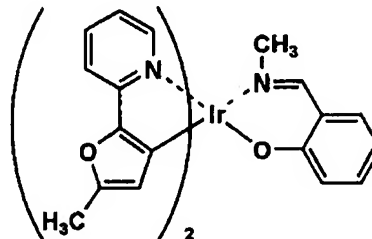


10

G1-3-3

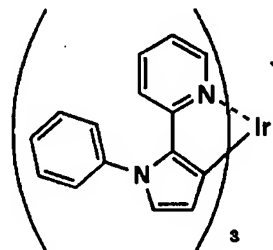


G1-3-4

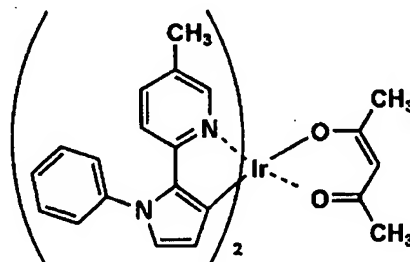


20

G1-3-5

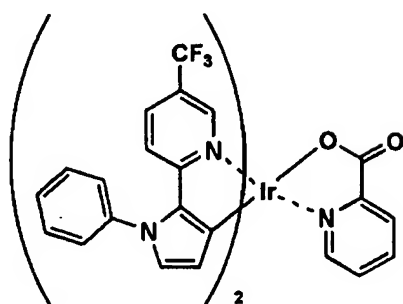


G1-3-6

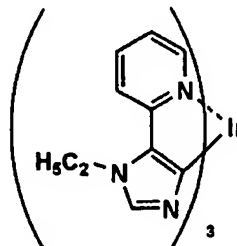


30

G1-3-7



G1-3-8

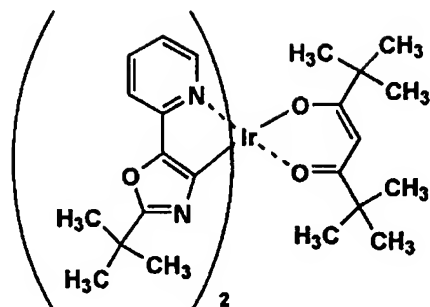


40

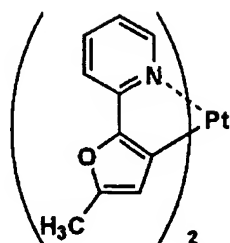
[ 1 0 1 6 ]  
[ 化 5 8 6 ]



G1-3-9

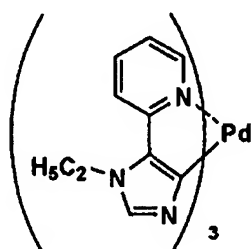


G1-3-10

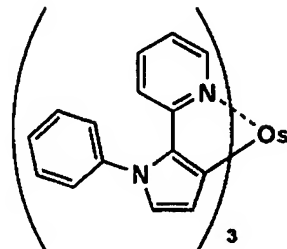


10

G1-3-11



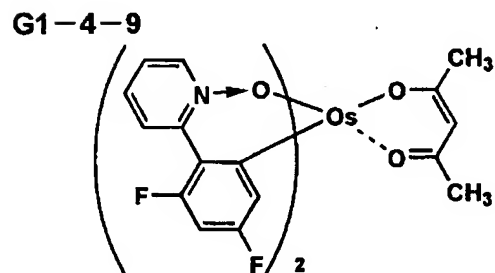
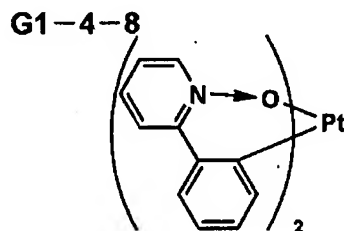
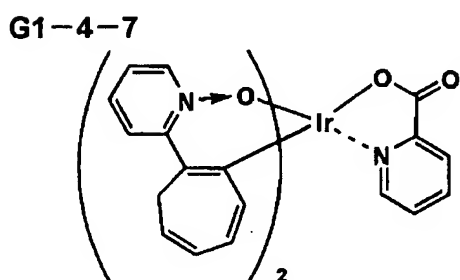
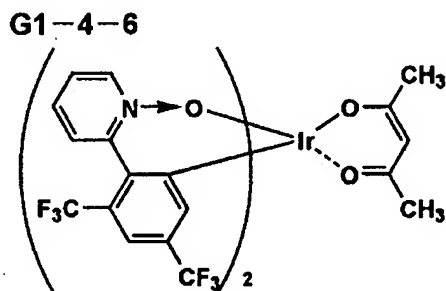
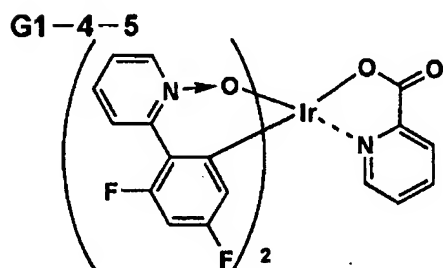
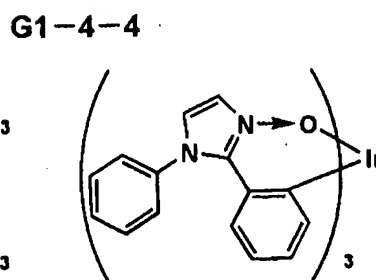
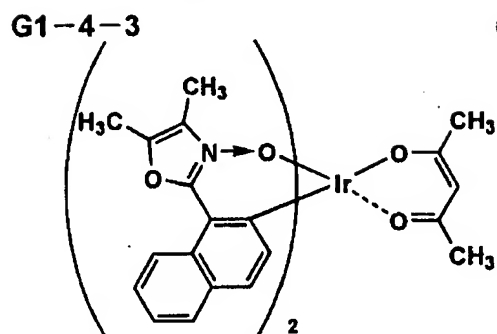
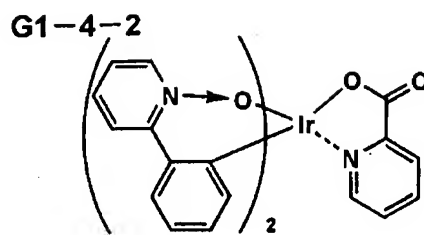
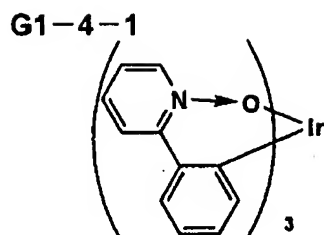
G1-3-12



20

【 1 0 1 7 】

【 化 5 8 7 】



[ 1 0 1 8 ]  
[ 化 5 8 8 ]

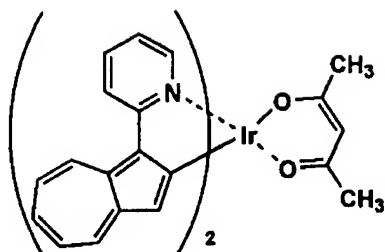
10

20

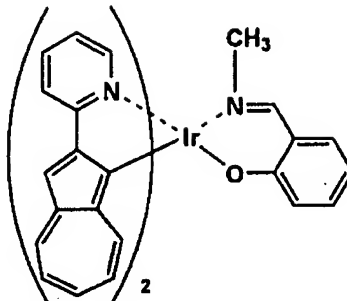
30

40

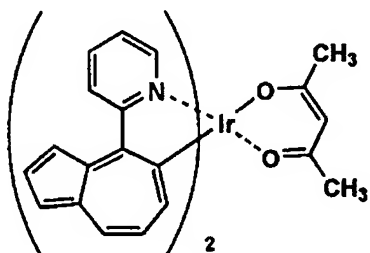
G1-5-1



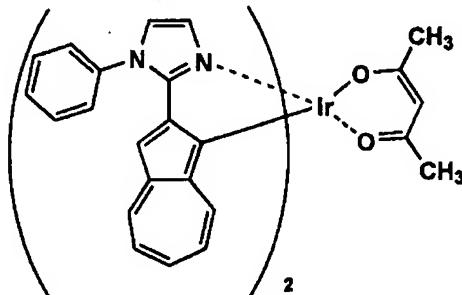
G1-5-2



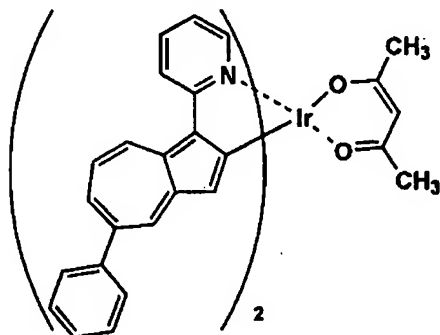
G1-5-3



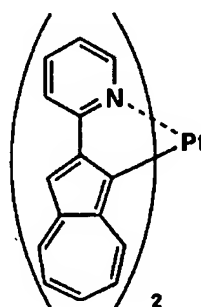
G1-5-4



G1-5-5



G1-5-6



## 【1019】

本発明に係る一般式 (G1-1) ~ (G1-5) で表される化合物は、当業者で公知の方法に従って合成することができ、例えば、J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304ページ (2001年) 及び Inorg. Chem., 40巻、1704ページ (2001年) 等に記載のイリジウム錯体の合成例に準じて、得ることができる。

## 【1020】

本発明に係る白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記一般式 (A1-1) ~ (F1-5) でそれぞれ表される化合物から選ばれる化合物、また、前記一般式 (C2-2) または (C2-3) で表される構造単位を有するポリシラン化合物、前記分子中の窒素原子数と炭素原子数の比 (N/C) が、0以上0.05以下である蛍光性化合物、更には、前記蛍光極大波長が415nm以下、分子量が500~2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比 (F/(H+F)) が0~0.9である蛍光性化合物等は有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する何れの層に含有されても良いが、前記一般式 (A1-1) ~ (F1-5) で表される化合物のうち、前記一

10

20

30

50

一般式 (A 1-1) ~ (A 1-6)、一般式 (A 2-1) ~ (A 2-7)、一般式 (B 1-1)、一般式 (B 1-6)、一般式 (B 1-11)、一般式 (B 1-13)、一般式 (B 2-1) ~ (B 2-8)、一般式 (B 3-1) ~ (B 3-2)、一般式 (B 4-1)、一般式 (B 5-1) ~ (B 5-3)、一般式 (B 6-1) ~ (B 6-2)、一般式 (B 7-1)、一般式 (B 8-1)、一般式 (B 9-1)、一般式 (B 10-1)、一般式 (B 11-1) ~ (B 11-3)、一般式 (C 1-1-1)、(C 1-1-2)、(C 1-1-3)、一般式 (C 1-2-1)、(C 1-2-3)、一般式 (C 1-3) ~ (C 1-7)、一般式 (C 1-8-1)、(C 1-8-2)、一般式 (C 2-1)、一般式 (C 2-4) ~ (C 2-7)、一般式 (C 3-1) ~ (C 3-4)、一般式 (C 4-1)、一般式 (C 5-1) ~ (C 5-2)、一般式 (C 6-1) ~ (C 6-V)、一般式 (C 7-1) ~ (C 7-4)、一般式 (C 8-1) ~ (C 8-6)、一般式 (C 9-1)、一般式 (C 10-1)、一般式 (C 11-1)、一般式 (C 12-1)、一般式 (D 1-1) ~ (D 1-6)、一般式 (D 2-1) ~ (D 2-6)、一般式 (D 3-1) ~ (D 3-6)、一般式 (E 1-1)、一般式 (E 1-5)、一般式 (E 2-1) 及び (E 2-5) でそれぞれ表される化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物は、少なくとも発光層、正孔輸送層、電子輸送層のいずれか1層に含有することが好ましい。

#### 【1021】

また、前記一般式 (C 2-2)、(C 2-3) で表される構造単位を有するポリシラン、前記分子中の窒素原子数と炭素原子数の比 (N/C) が、0以上0.05以下である蛍光性化合物、または、蛍光極大波長が415nm以下、分子量が500~2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比 (F/(H+F)) が0~0.9である蛍光性化合物等も、発光層、正孔輸送層、電子輸送層のいずれか1層に含有させ用いるとよい。

#### 【1022】

中でも、前記、一般式 (A 1-1) ~ (A 1-6)、一般式 (A 2-1) ~ (A 2-7)、一般式 (B 1-1)、一般式 (B 1-6)、一般式 (B 1-11)、一般式 (B 1-13)、一般式 (B 2-1) ~ (B 2-8)、一般式 (B 3-1)、(B 3-2)、一般式 (B 4-1)、一般式 (B 5-1) ~ (B 5-3)、一般式 (B 6-1)、(B 6-2)、一般式 (B 7-1)、一般式 (B 8-1)、一般式 (B 9-1)、一般式 (B 10-1)、一般式 (B 11-1) ~ (B 11-3)、一般式 (C 1-1-1)、(C 1-1-2)、(C 1-1-3)、一般式 (C 1-2-1)、(C 1-2-3)、一般式 (C 1-3) ~ (C 1-7)、一般式 (C 1-8-1)、(C 1-8-2)、一般式 (C 2-1)、一般式 (C 2-4) ~ (C 2-7)、一般式 (C 3-1) ~ (C 3-4)、一般式 (C 4-1)、一般式 (C 5-1)、(C 5-2)、一般式 (C 6-1) ~ (C 6-V)、一般式 (C 7-1) ~ (C 7-4)、一般式 (C 8-1) ~ (C 8-6)、一般式 (C 9-1)、一般式 (C 10-1)、一般式 (C 11-1)、一般式 (C 12-1)、一般式 (D 1-1) ~ (D 1-6)、一般式 (D 2-1) ~ (D 2-6) および一般式 (D 3-1) ~ (D 3-6) でそれぞれ表される化合物等は、少なくとも発光層、電子輸送層のいずれか1層に含有させるとよい。

#### 【1023】

また、特に発光層にホスト化合物として含有するのが好ましい。

#### 【1024】

また、前記、少なくとも1つの層に下記一般式 (C 2-2) または (C 2-3) で表される構造単位を有するポリシラン、分子中の窒素原子数と炭素原子数の比 (N/C) が、0以上0.05以下である蛍光性化合物や、蛍光極大波長が415nm以下、分子量が500~2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比 (F/(H+F)) が0~0.9である蛍光性化合物等についても、発光層または電子輸送層のいずれかに含有する場合に、白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子を構成するうえで好ましい。特に発光層にホスト化合物として含有するのが好ましい。

#### 【1025】

また、本発明に係わる白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記、一般式(E 1-1)、一般式(E 1-5)、一般式(E 2-1)および一般式(E 2-5)でそれぞれ表される化合物については、正孔輸送層に含有させると好ましく、正孔輸送物質として優れた化合物である。

【1026】

また、前記、一般式(D 1-1)～(D 1-6)、一般式(D 2-1)～(D 2-6)、一般式(D 3-1)～(D 3-6)および一般式(F 1-1)～(F 1-5)でそれぞれ表される化合物については、正孔阻止層(電子輸送層)に含有させるのが好ましく、優れた正孔ブロック層を形成する。

【1027】

以上のように、本発明に係わる蛍光性化合物は、それぞれ前記の好ましい態様において用いることにより、発光輝度が高く、発光効率の向上および耐久性の両立を達成した有機エレクトロルミネッセンス素子が提供される。

【1028】

本発明において、前記蛍光性化合物は発光層において用いるとき、ホスト化合物として、ドーパント化合物と共に用いられるが、本発明において「ホスト化合物」とは、2種以上の化合物で構成される発光層中にて混合比(質量)の最も多い化合物のことを意味し、それ以外の化合物については「ドーパント化合物」という。例えば、発光層を化合物A、化合物Bという2種で構成し、その混合比がA:B=10:90であれば化合物Aがドーパント化合物であり、化合物Bがホスト化合物である。更に、発光層を化合物A、化合物B、化合物Cの3種から構成し、その混合比がA:B:C=5:10:85であれば、化合物A、化合物Bがドーパント化合物であり、化合物Cがホスト化合物である。従って、本発明における燐光性化合物はドーパント化合物の一種である。

【1029】

本発明における「燐光性化合物」とは励起三重項からの発光が観測される化合物であり、燐光量子収率が、25℃において0.001以上の化合物である。燐光量子収率は好ましくは0.01以上、更に好ましくは0.1以上である。

【1030】

上記燐光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光I Iの398頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定できる。溶液中での燐光量子収率は種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明に用いられる燐光性化合物は、任意の溶媒の何れかにおいて上記燐光量子収率が達成されれば良い。

【1031】

本発明で用いられる燐光性化合物としては、好ましくは元素の周期律表でV I I I属の金属を含有する錯体系化合物であり、更に好ましくは、イリジウム化合物、オスミウム化合物、又は白金化合物(白金錯体系化合物)であり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

【1032】

以下に、本発明で用いられる燐光性化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。これらの化合物は、例えば、Inorg. Chem. 40巻、1704～1711に記載の方法等により合成できる。

【1033】

【化589】

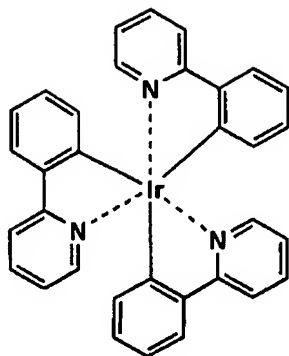
10

20

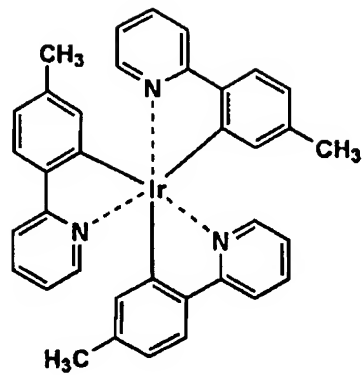
30

40

Ir-1

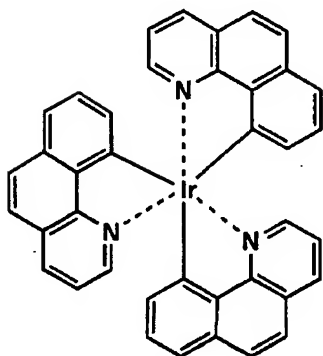


Ir-2

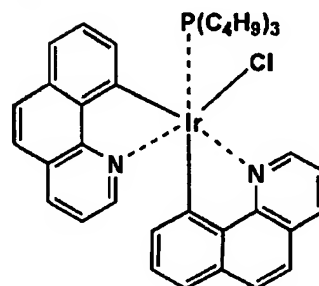


10

Ir-3

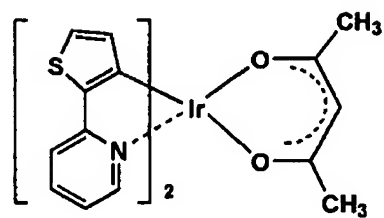


Ir-4

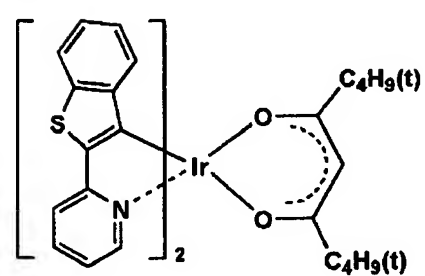


20

Ir-5



Ir-6

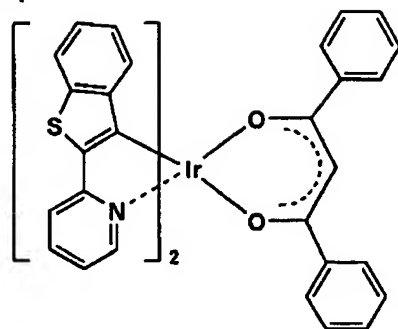


30

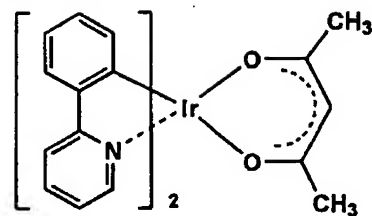
[ 1 0 3 4 ]  
[ 化 5 9 0 ]

40

Ir-7

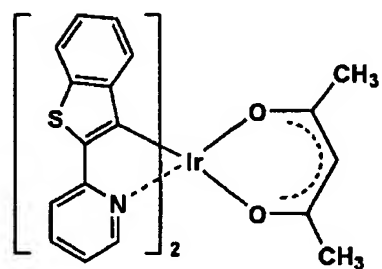


Ir-8

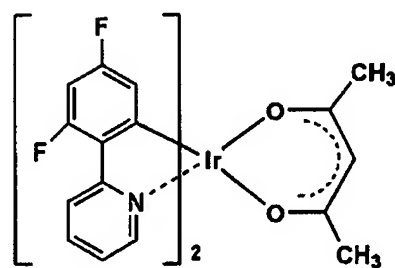


10

Ir-9

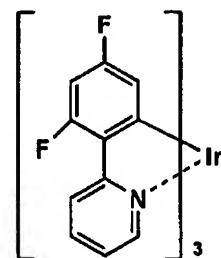


Ir-10

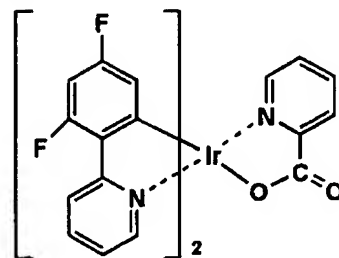


20

Ir-11



Ir-12

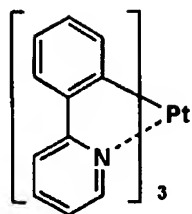


30

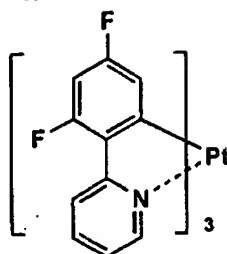
【 1 0 3 5 】

【 化 5 9 1 】

Pt-1

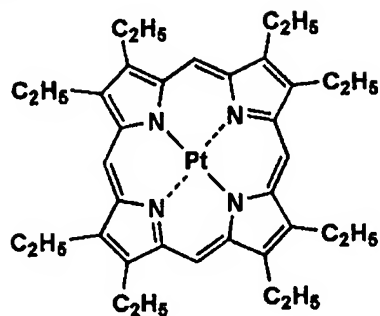


Pt-2



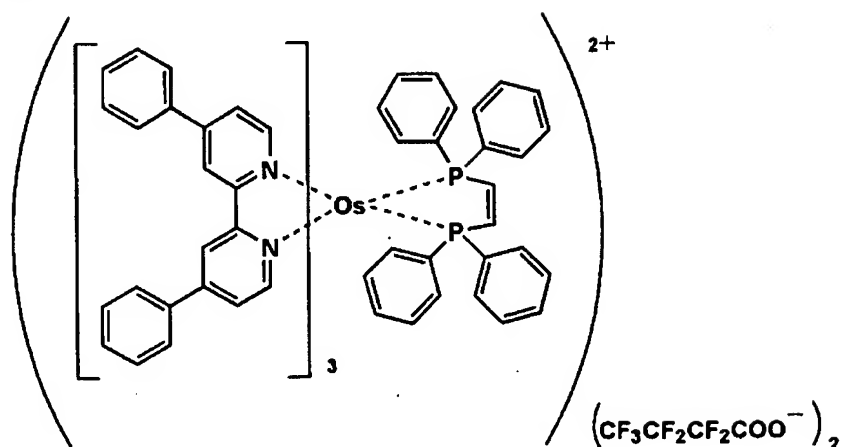
10

Pt-3



20

A-1



30

## 【1036】

また、本発明に係わる白色発光有機EL素子において、前記ホスト化合物と共に用いられる特に好ましい燐光性化合物としては、前記一般式(G1-1)～(G1-5)で表される化合物である。

40

## 【1037】

又、別の形態では、ホスト化合物と燐光性化合物の他に、燐光性化合物からの発光の極大波長よりも長波な領域に、蛍光極大波長を有する蛍光性化合物を少なくとも1種含有する場合もある。この場合、ホスト化合物と燐光性化合物からのエネルギー移動で、有機EL素子としての電界発光は蛍光性化合物からの発光が得られる。蛍光性化合物として好ましいのは、溶液状態で蛍光量子収率が高いものである。ここで、蛍光量子収率は10%以上、特に30%以上が好ましい。具体的な蛍光性化合物は、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベンツアントラセ

50



ン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素、又は希土類錯体系蛍光体等が挙げられる。

#### 【1038】

ここでの蛍光量子収率も、前記第4版実験化学講座7の分光ⅠⅠの362頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定することが出来る。

#### 【1039】

前記燐光性化合物は、前記のような燐光量子収率が、25℃において0.001以上であるほか、前記ホストとなる蛍光性化合物の蛍光極大波長よりも長い燐光発光極大波長を有するものである。これにより、ホストとなる蛍光性化合物の発光極大波長より長波の燐光性化合物を用いて燐光性化合物の発光、即ち三重項状態を利用した、ホスト化合物の蛍光極大波長よりも長波において電界発光するEL素子を得ることができる。従って、用いられる燐光性化合物の燐光発光極大波長としては特に制限されるものではなく、原理的には、中心金属、配位子、配位子の置換基等を選択することで得られる発光波長を変化させることができる。

10

#### 【1040】

例えば、350～440nmの領域に蛍光極大波長を有する蛍光性化合物をホスト化合物として用い、例えば、緑の領域に燐光を有するイリジウム錯体を用いることで緑領域に電界発光する有機EL素子を得ることが出来る。

#### 【1041】

本明細書の蛍光性化合物及び燐光性化合物が発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」(日本色彩学会編、東京大学出版会、1985)の108頁の図4.16において、分光放射輝度計CS-1000(ミノルタ製)で測定した結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で決定される。

20

#### 【1042】

##### 《有機EL素子の構成層》

有機EL素子の基本的な構成層について説明する。

#### 【1043】

本発明において、有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されない。

30

(i) 陽極/発光層/電子輸送層/陰極

(ii) 陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/陰極

(iii) 陽極/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子輸送層/陰極

(iv) 陽極/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子輸送層/陰極バッファ層/陰極

(v) 陽極/陽極バッファ層/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子輸送層/陰極バッファ層/陰極

##### 《陽極》

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としてはAu等の金属、CuI、インジウムチンオキシド(ITO)、SnO<sub>2</sub>、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。また、IDIXO(In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-ZnO)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィ法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は(100μm以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。この陽極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、陽極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10～1000nm、好ましくは10～200nmの範囲で選ばれる。

40

#### 【1044】

50

## 《陰極》

一方、陰極としては、仕事関数の小さい（4 e V 以下）金属（電子注入性金属と称する）、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム－カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム／銅混合物、マグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム（ $Al_2O_3$ ）混合物、インジウム、リチウム／アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これらの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属とこれより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えばマグネシウム／銀混合物、マグネシウム／アルミニウム混合物、マグネシウム／インジウム混合物、アルミニウム／酸化アルミニウム（ $Al_2O_3$ ）混合物、リチウム／アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百  $\Omega/\square$  以下が好ましく、膜厚は通常 10 nm ～ 1000 nm、好ましくは 50 nm ～ 200 nm の範囲で選ばれる。なお、発光を透過させるため、有機 EL 素子の陽極または陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都合である。

10

## 【1045】

次に、本発明の有機 EL 素子の構成層として用いられる、注入層、正孔輸送層、電子輸送層等について説明する。

20

## 【1046】

《注入層》：電子注入層、正孔注入層

注入層は必要に応じて設け、電子注入層と正孔注入層があり、上記のごとく陽極と発光層または正孔輸送層の間、及び、陰極と発光層または電子輸送層との間に存在させてもよい。

## 【1047】

注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機 EL 素子とその工業化最前線（1998 年 11 月 30 日 エヌ・ティー・エス社発行）」の第 2 編第 2 章「電極材料」（123～166 頁）に詳細に記載されており、正孔注入層（陽極バッファ層）と電子注入層（陰極バッファ層）とがある。

30

## 【1048】

陽極バッファ層（正孔注入層）は、特開平 9-45479 号公報、同 9-260062 号公報、同 8-288069 号公報等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファ層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファ層、アモルファスカーボンバッファ層、ポリアニリン（エメラルディン）やポリチオフェン等の導電性高分子を用いた高分子バッファ層等が挙げられる。

## 【1049】

陰極バッファ層（電子注入層）は、特開平 6-325871 号公報、同 9-17574 号公報、同 10-74586 号公報等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファ層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファ層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファ層等が挙げられる。

40

## 【1050】

上記バッファ層（注入層）はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は 0.1 nm ～ 100 nm の範囲が好ましい。

## 【1051】

阻止層は、上記のごとく、有機化合物薄膜の基本構成層の他に必要に応じて設けられるものである。例えば特開平 11-204258 号、同 11-204359 号、及び「有機 EL 素子とその工業化最前線（1998 年 11 月 30 日 エヌ・ティー・エス社発行）」の 237 頁等に記載されている正孔阻止（ホールブロック）層がある。

50

## 【1052】

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層であり、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。

## 【1053】

前記、一般式(D1-1)～(D1-6)、一般式(D2-1)～(D2-6)、一般式(D3-1)～(D3-6)および一般式(F1-1)～(F1-5)でそれぞれ表される化合物について正孔阻止層に用いて有利であることは述べた。

## 【1054】

一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層であり、正孔を輸送する機能を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつつ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。 10

## 【1055】

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。

## 【1056】

正孔輸送層、電子輸送層は単層もしくは複数層設けることができる。

## 【1057】

本発明の有機EL素子においては、発光層のホスト、発光層に隣接する正孔輸送層、発光層に隣接する電子輸送層すべての材料の蛍光極大波長が415nm以下であることが好ましい。 20

## 【1058】

## 《発光層》

本発明に係る発光層は、電極または電子輸送層、正孔輸送層から注入されてくる電子および正孔が再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層内であっても発光層と隣接層との界面であっても良い。

## 【1059】

発光層に使用される材料(以下、発光材料という)は、蛍光または燐光を発する有機化合物または錯体であることが好ましく、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から適宜選択して用いることができる。このような発光材料は、主に有機化合物であり、所望の色調により、例えば、Macromol. Synth., 125巻, 17～25頁に記載の化合物等を用いることができるが、本発明においては前記燐光性化合物が好ましい。 30

## 【1060】

本発明において発光材料として用いられる前記化合物は、発光性能の他に、正孔輸送機能や電子輸送機能を併せ持っても良く、正孔輸送材料や電子輸送材料の殆どが、発光材料としても使用できる。

## 【1061】

その他の発光材料として、p-ポリフェニレンビニレンやポリフルオレンのような高分子材料でも良く、さらに前記発光材料を高分子鎖に導入した、または前記発光材料を高分子の主鎖とした高分子材料を使用しても良い。 40

## 【1062】

この発光層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法などの公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。発光層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm～5μmの範囲で選ばれる。この発光層は、これらの発光材料一種又は二種以上からなる一層構造であってもよいし、あるいは、同一組成又は異種組成の複数層からなる積層構造であってもよい。本発明の有機EL素子の好ましい態様は、発光層が二種以上の材料からなり、その内の一種が本発明の化合物であるときである。

## 【1063】

また、この発光層は、特開昭57-51781号公報に記載されているように、樹脂など 50

の結着材と共に上記発光材料を溶剤に溶かして溶液としたのち、これをスピンコート法などにより薄膜化して形成することができる。このようにして形成された発光層の膜厚については、特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、通常は5 nm～5 μmの範囲である。

#### 【1064】

発光層を構成する材料が2種以上であるとき、主成分をホスト、その他の成分をドーパントといい、本発明に係るドーパントは、前記燐光性化合物が用いられることが好ましい。

#### 【1065】

その場合、主成分であるホスト化合物に対するドーパントの混合比は好ましくは質量で0.1質量%～15質量%未満である。

#### 【1066】

(ホスト化合物)

本発明の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子において、ホスト化合物としては、前記、一般式(A1-1)～(A1-6)、一般式(A2-1)～(A2-7)、一般式(B1-1)、一般式(B1-6)、一般式(B1-11)、一般式(B1-13)、一般式(B2-1)～(B2-8)、一般式(B3-1)、(B3-2)、一般式(B4-1)、一般式(B5-1)～(B5-3)、一般式(B6-1)、(B6-2)、一般式(B7-1)、一般式(B8-1)、一般式(B9-1)、一般式(B10-1)、一般式(B11-1)～(B11-3)、一般式(C1-1-1)、(C1-1-2)、(C1-1-3)、一般式(C1-2-1)、(C1-2-3)、一般式(C1-3)～(C1-7)、一般式(C1-8-1)、(C1-8-2)、一般式(C2-1)、一般式(C2-4)～(C2-7)、一般式(C3-1)～(C3-4)、一般式(C4-1)、一般式(C5-1)、(C5-2)、一般式(C6-I)～(C6-V)、一般式(C7-1)～(C7-4)、一般式(C8-1)～(C8-6)、一般式(C9-1)、一般式(C10-1)、一般式(C11-1)、一般式(C12-1)、一般式(D1-1)～(D1-6)、一般式(D2-1)～(D2-6)および一般式(D3-1)～(D3-6)でそれぞれ表される化合物、また、前記、少なくとも1つの層に下記一般式(C2-2)または(C2-3)で表される構造単位を有するポリシラン、分子中の窒素原子数と炭素原子数の比(N/C)が、0以上0.05以下である蛍光性化合物や、蛍光極大波長が415 nm以下、分子量が500～2000、分子中の水素原子とフッ素原子の総和に対するフッ素原子の比(F/(H+F))が0～0.9である蛍光性化合物等が好ましいことも前に述べた。

#### 【1067】

発光層のホスト化合物は、有機化合物または錯体であることが好ましく、本発明においては、好ましくは蛍光極大波長が415 nm以下である。ホスト化合物の極大波長を415 nm以下にすることにより可視光、前記ドーパントの発光において、特にBGR発光が可能となる。

#### 【1068】

つまり蛍光極大波長を415 nm以下にすることにより、通常のπ共役蛍光もしくは燐光材料において、π-π吸収を420 nm以下に有するエネルギー移動型のドーパント発光が可能である。また415 nm以下の蛍光を有することから非常にワイドエネルギーギャップ(イオン化ポテンシャル-電子親和力、HOMO-LUMO)であるので、キャリアトラップ型にも有利に働く。

#### 【1069】

このようなホスト化合物としては、有機EL素子に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いてもよい。また前記の正孔輸送材料や電子輸送材料の殆どが発光層ホスト化合物としても使用できる。

#### 【1070】

ポリビニルカルバゾールやポリフルオレンのような高分子材料でもよく、さらに前記ホスト化合物を高分子鎖に導入した、または前記ホスト化合物を高分子の主鎖とした高分子材

10

20

30

40

50

料を使用してもよい。

【1071】

ホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T<sub>g</sub>（ガラス転移温度）である化合物が好ましい。

【1072】

（ドープアント）

次にドープアントについて述べる。

【1073】

原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをドープアントに移動させることでドープアントからの発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはドープアントがキャリアトラップとなり、ドープアント化合物上でキャリアの再結合が起こりドープアントからの発光が得られるというキャリアトラップ型であるが、いずれの場合においても、ドープアント化合物の励起状態のエネルギーはホスト化合物の励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

10

【1074】

本発明の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子において、ドープアントとして好ましいものは、化589～化591で表される化合物、特にIr錯体、また、本発明一般式（G1-1）～（G1-5）で表される化合物である。

【1075】

本発明は実質白色の発光を生じる有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものであるが、現在のところ単一の発光材料で白色発光を示すものがないため、複数の発光材料により複数の発光色を同時に発光させて混色により白色発光をえる。複数の発光色の組み合わせとしては、青色、緑色、青色の3原色の3つの発光極大波長を有する発光材料を含有させたものでも良いし、青色と黄色、青緑と橙色等の補色の関係を利用した2つの発光極大波長を有する発光材料を含有したものでも良い。勿論4以上の発光極大波長を有する発光材料を組み合わせてもかまわない。

20

【1076】

例えば、発光材料としてリン光性ドープアントを用いる場合には、発光波長の異なる前記の関係を有する複数のドープアントを用いて混色により白色発光を得る。また蛍光性発光材料の場合にも同様である。

30

【1077】

また、複数の発光色を得るための発光材料の組み合わせは、複数の、燐光または蛍光で発光する材料を、複数組み合わせたもの、これら蛍光または燐光で発光する発光材料と、発光材料からの光を励起光として発光する色素材料と組み合わせたものいずれでも良い。

【1078】

発光層の材料としては特に制限はなく、前記、公知の発光材料の中から任意のものを選択して組み合わせれば白色化すれば良いが、特に、燐光を利用して発光する素子を形成する場合に用いられる発光ホストとしては、カルバゾール誘導体、ビフェニル誘導体、スチリル誘導体、ベンゾフラン誘導体、チオフェン誘導体、アリールシラン誘導体等の部分構造を単位として含む材料が挙げられる。なかでもカルバゾール誘導体とビフェニル誘導体は高い発光効率を示す好ましい発光材料である。

40

【1079】

正孔輸送層を設ける場合は、材料に特に制限はないが、アノード電極からの正孔を、発光する層に伝達する機能を有していれば良く、前記の、従来光導電材料において、正孔の電荷注入材料として慣用されているものや、EL素子の正孔輸送層に用いられている公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【1080】

電子輸送層を設ける場合においても、特に制限はなく、カソード電極からの電子を、発光する層に伝達する機能を有していればよく、前記の公知の材料の中から任意のものを選択

50

して用いることができる。

#### 【1081】

##### 《正孔輸送層》

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層もしくは複数層設けることができる。

#### 【1082】

本発明の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子において、正孔輸送材料としては、前記、一般式(E1-1)、一般式(E1-5)、一般式(E2-1)および一般式(E2-5)でそれぞれ表される化合物が好ましいが、特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものやEL素子の正孔注入層、正孔輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることもできる。

#### 【1083】

正孔輸送材料は、正孔の注入もしくは輸送、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。他に、例えばトリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

#### 【1084】

正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

#### 【1085】

芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノフェニル; N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン(TPD); 2, 2'-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1'-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N', N'-テトラ-p-トリル-4, 4'-ジアミノビフェニル; 1, 1'-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン; ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4, 4'-ジアミノビフェニル; N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル; 4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオードリフェニル; N, N, N-トリ(p-トリル)アミン; 4-(ジ-p-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-p-トリルアミノ)スチリル]スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノ-(2-ジフェニルビニル)ベンゼン; 3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン; N-フェニルカルバゾール、さらには、米国特許第5, 061, 569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(NPD)、特開平4-308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4, 4', 4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(MTDATA)等が挙げられる。

#### 【1086】

さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

#### 【1087】

また、p型-Si, p型-SiC等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。

10

20

30

40

50

## 【1088】

また、本発明においては正孔輸送層の正孔輸送材料は415nm以下に蛍光極大波長を有することが好ましい。すなわち、正孔輸送材料は、正孔輸送能を有しつつかつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T<sub>g</sub>である化合物が好ましい。

## 【1089】

この正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、LB法等の公知の方法により、薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特に制限はないが、通常は5～5000nm程度である。この正孔輸送層は、上記材料の一種または二種以上からなる一層構造であってもよい。

10

## 【1090】

## 《電子輸送層》

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層もしくは複数層設けることができる。

## 【1091】

従来、単層の電子輸送層、及び複数層とする場合は発光層に対して陰極側に隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料（正孔阻止材料を兼ねる）としては、下記の材料が知られている。

## 【1092】

さらに、電子輸送層は、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

20

## 【1093】

本発明の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子において、本発明に係わる前記の化合物のなかでは、一般式(D1-1)～(D3-6)、また(F1-1)～(F1-5)で表される化合物が正孔阻止材料として好ましい。

## 【1094】

この電子輸送層に用いられる材料（以下、電子輸送材料という）の例としては、本発明に係わる前記化合物のほか、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、ナフタレンペリレンなどの複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体などが挙げられる。さらに、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。

30

## 【1095】

さらにこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主鎖とした高分子材料を用いることもできる。

## 【1096】

また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、例えばトリス(8-キノリノール)アルミニウム(A1q)、トリス(5,7-ジクロロ-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5,7-ジブromo-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)亜鉛(Znq)など、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、Ga又はPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができる。その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、又はそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基などで置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、正孔輸送層と同様に、n型-Si、n型-SiCなどの無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

40

50

## 【1097】

電子輸送層に用いられる好ましい化合物は、415nm以下に蛍光極大波長を有することが好ましい。すなわち、電子輸送層に用いられる化合物は、電子輸送能を有しつつかつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高T<sub>g</sub>である化合物が好ましい。

## 【1098】

《基体（基板、基材、支持体等ともいう）》

本発明の有機EL素子に係る基体としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また、透明のものであれば特に制限はないが、好ましく用いられる基板としては例えばガラス、石英、光透過性樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい基体は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィルムである。

10

## 【1099】

樹脂フィルムとしては、例えばポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート（PEN）、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート（PC）、セルローストリアセテート（TAC）、セルロースアセテートプロピオネート（CAP）等からなるフィルム等が挙げられる。

## 【1100】

樹脂フィルムの表面には、無機物もしくは有機物の被膜またはその両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよい。

## 【1101】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光の室温における外部取り出し効率は1%以上であることが好ましく、より好ましくは2%以上である。ここに、外部取り出し量子効率(%) = 有機EL素子外部に発光した光子数 / 有機EL素子に流した電子数 × 100である。

20

## 【1102】

また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用してもよい。

## 【1103】

本発明の白色発光有機EL表示素子は少なくとも2種類の異なる発光極大波長を有する有機EL素子からなるが、有機EL素子を作製する好適な例を説明する。

## 【1104】

《有機EL素子の作製方法》

本発明の有機EL素子の作製方法の一例として、陽極／正孔注入層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／電子注入層／陰極からなる有機EL素子の作製法について説明する。

30

## 【1105】

まず適当な基体上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、1μm以下、好ましくは10nm～200nmの膜厚になるように、蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陽極を作製する。次に、この上に素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、正孔阻止層の有機化合物薄膜を形成させる。

## 【1106】

この有機化合物薄膜の薄膜化の方法としては、前記の如くスピンコート法、キャスト法、インクジェット法、蒸着法、印刷法等があるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法またはスピンコート法が特に好ましい。さらに層ごとに異なる製膜法を適用してもよい。製膜に蒸着法を採用する場合、その蒸着条件は、使用する化合物の種類等により異なるが、一般にボート加熱温度50～450℃、真空度 $10^{-6}$ Pa～ $10^{-2}$ Pa、蒸着速度0.01nm～50nm/秒、基板温度-50℃～300℃、膜厚0.1nm～5μmの範囲で適宜選ぶことが望ましい。

40

## 【1107】

これらの層の形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、1μm以下好ましくは50nm～200nmの範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望の有機EL素子が得られる。この有機EL素子

50



の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

#### 【1108】

図1は本発明に係る白色有機エレクトロルミネッセンス素子の実施の形態の一例を簡略化して示すものであり、ガラス等の基板10の表面に陽極1、正孔輸送層11、発光層（代表的には発光材料（ドーパント）およびホスト化合物からなる）3、電子輸送層12、陰極2を積層することによって形成してある。そして陽極1に正電圧を、陰極2に負電圧を、電圧2～40V程度印加すると、電子輸送層12を介して発光層3に注入された電子と、正孔輸送層11を介して発光層3に注入されたホールとが、発光層3内で再結合して発光が起こるものである。

10

#### 【1109】

各層を構成する材料については前記の通りであるが、最も簡便に白色発光素子を構成するには、発光層における、ホスト化合物と共に用いる発光材料に、発光特性が互いに補色の関係にある、例えば青と黄または青緑と橙等補色の関係にある発光色を有する2種のドーパントを組み合わせる、また、青、緑、赤にそれぞれ3色に発光するドーパント（リン光性化合物）を、その発光効率を考慮しながら、適宜、混合してドーピングすることによって得ることが出来る。勿論、充分な白色光を得るために4種以上の発光材料を組み合わせてもよい。

20

#### 【1110】

本発明の白色有機エレクトロルミネッセンス素子は、基本的にはドーパントを混合するだけで、発光層もしくは正孔輸送層或いは電子輸送層等の形成時のみマスクを設け、マスクにより塗り分けるなど単純に配置するだけでよく、他層は共通であるのでマスク等のパターンニングは不要であり、一面に蒸着法、キャスト法、スピコート法、インクジェット法、印刷法等で例えば電極膜を形成でき、生産性も向上するものである。この方法によれば、複数色の発光素子をアレー状に並列配置した白色有機EL装置と異なり、素子自体が発光白色である。

#### 【1111】

また作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。

30

#### 【1112】

このようにして得られた白色表示素子に、直流電圧を印加する場合には、陽極を＋、陰極を－の極性として電圧2～40V程度を印加すると、白色の発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れずに発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加する場合には、陽極が＋、陰極が－の状態になったときのみ発光する。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

#### 【1113】

本発明の白色発光有機EL素子は、表示デバイス、ディスプレイ、各種発光光源に用いることができるが、家庭用照明用、車内照明、また露光光源のような一種のランプとして、また液晶表示装置のバックライトとして表示装置にも有用に用いられる。

40

#### 【1114】

その他、時計等のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体等の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等、更には表示装置を必要とする一般の家庭用電気器具等広い範囲の用途が挙げられる。

#### 【1115】

##### 【実施例】

以下実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。

#### 【1116】

実施例1

50

〈有機エレクトロルミネッセンス素子の作成〉

酸素プラズマにより有機エレクトロルミネッセンス素子を形成するベースフィルム表面のエッチングを行った。次に、エッチングを行ったベースフィルム上にスパッタ法によりITOを100nmの膜厚で成膜し、透明電極層となる透明なアノード電極を形成した。次に、真空蒸着法を用いて、100mm×100mmの開口部をもつステンレス薄膜板をマスクとして利用して、真空度 $10^{-4}$ Paの環境下で、抵抗加熱により $\alpha$ -NPDを蒸着レート5Å/sで蒸着して20nm膜厚で成膜して正孔輸送層とした。次に、正孔輸送層の上にマスクを利用して、抵抗加熱により発光ホストであるCBPを蒸着レート5Å/s、燐光ドーパントIr-6を蒸着レート0.05Å/s、燐光ドーパントIr-12を蒸着レート0.2Å/sで共蒸着して30nmの膜厚で成膜して発光層とした。次に、発光層の上にマスクを利用して抵抗加熱によりBCを蒸着レート5Å/sで蒸着して10nm膜厚で成膜し、正孔阻止層を兼ねた電子輸送層とした後、さらにAlq<sub>3</sub>を蒸着レート5Å/sで蒸着して40nm膜厚で成膜し、BC層とAlq<sub>3</sub>層による積層構成の電子輸送層を形成した。

10

【1117】

次に、所定の電極パターン形状の開口部をもつステンレスマスクを利用して、抵抗加熱によりフッ化リチウムを蒸着レート0.1Å/sで蒸着して0.5nmの膜厚で成膜した後、アルミニウムを蒸着レート10Å/sで蒸着して100nmの膜厚で成膜して反電極層となるメタルカソード電極を形成して、比較例としての有機エレクトロルミネッセンス素子1-1を作成した。

20

【1118】

さらに、発光ホストとして用いる化合物を表1に示す化合物に置き換えた以外は有機エレクトロルミネッセンス素子1-1と同様にして、本発明の実施例である有機エレクトロルミネッセンス素子を作成した。

【1119】

これらにより構成された有機エレクトロルミネッセンス素子は、CBPまたは本発明に係わる前記化合物と、そして燐光ドーパントのIr-6、Ir-12の燐光を利用した2つの発光極大波長をもつ発光が同時に行われることによって白色発光を実現するものである。

【1120】

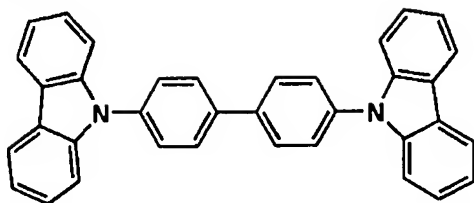
上記で使用した低分子材料の発光ホストであるCBP、燐光ドーパントのIr-6、Ir-12、また、 $\alpha$ -NPD、BC、Alq<sub>3</sub>の構造式を以下に示す。

30

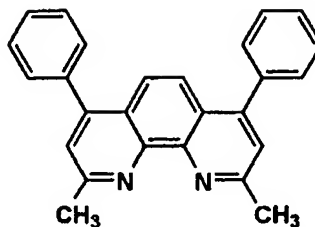
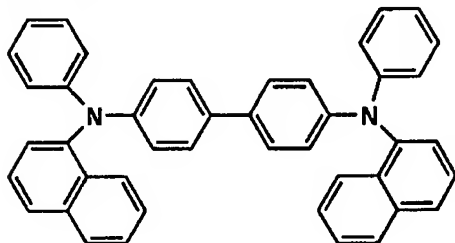
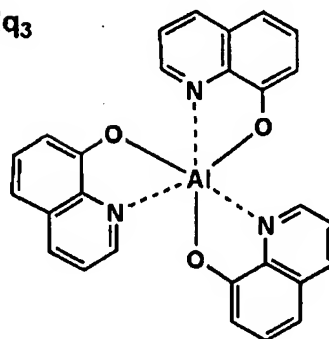
【1121】

【化592】

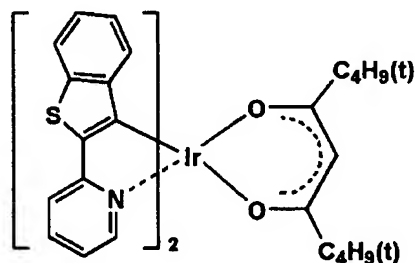
CBP



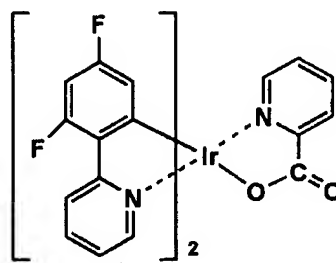
BC

 $\alpha$ -NPDAlq<sub>3</sub>

Ir-6



Ir-12



## 【1122】

〈有機エレクトロルミネッセンス素子の評価〉

作成した有機エレクトロルミネッセンス素子の評価を以下のようにして行い、結果を表1に示す。

## 【1123】

(発光輝度、発光効率)

有機エレクトロルミネッセンス素子1-1では、初期駆動電圧3Vで電流が流れ始め、発光層のドーパントである燐光性化合物からの青色の発光を示した。有機エレクトロルミネッセンス素子1-1の温度23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で10V直流電圧を印加した時の発光輝度(c d/m<sup>2</sup>)、発光効率(lm/W)を測定した。

## 【1124】

発光輝度、発光効率は有機エレクトロルミネッセンス素子1-1を100とした時の相対値で表した。発光輝度については、CS-1000(ミノルタ製)を用いて測定した。

## 【1125】

(耐久性)

10mA/cm<sup>2</sup>の一定電流で駆動したときに初期輝度が元の半分に低下するのに要した時間である半減寿命時間を指標として表した。半減寿命時間についても有機EL素子1-1を100とした時の相対値で表した。

## 【1126】

10

20

30

40

50

【表 2】

素子	化合物	発光輝度	発光効率	耐久性	備 考
1-1	CBP	100	100	100	比較例
1-2	A1-1-8	120	118	202	実施例
1-3	A1-2-2	124	116	205	実施例
1-4	A1-2-4	131	120	180	実施例
1-5	A1-3-5	122	112	179	実施例
1-6	A1-4-1	127	122	299	実施例
1-7	A1-5-2	125	133	247	実施例
1-8	A1-5-5	119	113	214	実施例
1-9	A1-6-2	127	117	209	実施例
1-10	A1-6-15	129	130	287	実施例
1-11	A2-1-2	140	144	253	実施例
1-12	A2-2-6	137	144	167	実施例
1-13	A2-2-11	135	131	169	実施例
1-14	A2-4-6	136	133	291	実施例
1-15	A2-4-8	141	139	233	実施例
1-16	A2-5-1	143	147	222	実施例
1-17	A2-5-8	137	133	201	実施例
1-18	A2-5-14	138	137	271	実施例
1-19	A2-6-1	129	128	265	実施例
1-20	A2-6-3	135	130	197	実施例
1-21	A2-7-2	144	131	252	実施例
1-22	A2-7-5	137	134	190	実施例
1-23	A2-7-6	141	130	169	実施例
1-24	B1-(I)-9	142	150	169	実施例
1-25	B1-(I)-38	147	140	246	実施例
1-26	B1-(I)-69	139	136	183	実施例
1-27	B1-(II)-12	146	138	255	実施例
1-28	B1-(II)-40	147	152	303	実施例
1-29	B1-(II)-64	150	158	242	実施例
1-30	B2-3	134	122	160	実施例
1-31	B2-18	129	127	260	実施例
1-32	B2-25	140	143	202	実施例
1-33	B3-1	126	117	268	実施例
1-34	B3-4	134	126	223	実施例
1-35	B3-7	139	148	300	実施例
1-36	B3-9	141	137	216	実施例
1-37	B3-11	136	142	265	実施例
1-38	B4-1	125	120	169	実施例
1-39	B4-3	127	116	228	実施例
1-40	B4-19	130	120	185	実施例

10

20

30

40

【1127】

【表 3】

素子	化合物	発光輝度	発光効率	耐久性	備考
1-41	B 5-1-1	148	153	303	実施例
1-42	B 5-1-5	151	152	156	実施例
1-43	B 5-1-12	146	152	196	実施例
1-44	B 5-2-2	139	141	263	実施例
1-45	B 5-2-8	128	121	207	実施例
1-46	B 5-2-15	134	140	263	実施例
1-47	B 5-3-1	128	126	226	実施例
1-48	B 5-3-2	130	125	278	実施例
1-49	B 6-1-1	131	138	178	実施例
1-50	B 6-1-2	141	140	277	実施例
1-51	B 6-1-5	138	127	301	実施例
1-52	B 6-2-3	124	114	156	実施例
1-53	B 6-2-11	124	113	292	実施例
1-54	B 6-2-18	130	137	182	実施例
1-55	B 7-1	126	117	242	実施例
1-56	B 7-8	132	127	185	実施例
1-57	B 7-19	145	139	303	実施例
1-58	B 7-25	134	139	266	実施例
1-59	B 7-28	138	134	269	実施例
1-60	B 8-3	130	131	253	実施例
1-61	B 8-8	136	127	156	実施例
1-62	B 8-18	141	129	204	実施例
1-63	B 8-59	137	129	168	実施例
1-64	B 8-70	138	142	172	実施例
1-65	B 9-8	129	130	208	実施例
1-66	B 9-12	135	137	212	実施例
1-67	B 9-28	142	132	295	実施例
1-68	B 9-42	138	140	259	実施例
1-69	B 9-53	133	128	232	実施例
1-70	B 10-3	126	119	286	実施例
1-71	B 10-4	124	117	233	実施例
1-72	B 10-11	128	131	163	実施例
1-73	B 11-1-1	125	118	288	実施例
1-74	B 11-1-5	133	132	283	実施例
1-75	B 11-1-20	140	129	272	実施例
1-76	B 11-2-1	132	133	163	実施例
1-77	B 11-3-4	130	122	187	実施例
1-78	B 11-4-1	125	131	266	実施例
1-79	B 11-4-2	124	122	178	実施例
1-80	B 11-4-4	137	128	186	実施例
1-81	C 1-1-52	151	150	162	実施例

10

20

30

40

【 1 1 2 8 】

【 表 4 】

素子	化合物	発光輝度	発光効率	耐久性	備考
1-82	C 1-1-53	130	138	280	実施例
1-83	C 1-2-1	130	121	216	実施例
1-84	C 1-2-2	150	148	220	実施例
1-85	C 1-3-1	132	122	254	実施例
1-86	C 1-3-31	128	138	273	実施例
1-87	C 1-4-1	123	119	266	実施例
1-88	C 1-5-4	139	127	183	実施例
1-89	C 1-5-16	143	145	268	実施例
1-90	C 1-6-9	134	130	267	実施例
1-91	C 1-7-1	137	125	299	実施例
1-92	C 1-7-26	136	143	265	実施例
1-93	C 1-8-1	142	145	255	実施例
1-94	C 1-8-3	131	126	267	実施例
1-95	C 1-9-5	140	146	221	実施例
1-96	C 2-1-3	136	144	209	実施例
1-97	C 2-1-9	128	123	206	実施例
1-98	C 2-1-17	131	123	244	実施例
1-99	C 2-4-1	136	124	214	実施例
1-100	C 2-4-13	132	123	246	実施例
1-101	C 2-5-2	133	126	257	実施例
1-102	C 2-5-9	130	121	252	実施例
1-103	C 2-6-2	137	124	249	実施例
1-104	C 2-7-3	151	137	187	実施例
1-105	C 4-1	140	132	238	実施例
1-106	C 4-5	135	122	300	実施例
1-107	C 4-10	129	132	201	実施例
1-108	C 5-1	149	156	165	実施例
1-109	C 5-10	125	127	203	実施例
1-110	C 5-15	122	119	263	実施例
1-111	C 6-1	145	148	204	実施例
1-112	C 6-6	130	137	177	実施例
1-113	C 6-38	123	128	275	実施例
1-114	C 6-NT-1	141	150	178	実施例
1-115	C 6-NT-11	127	131	207	実施例
1-116	C 6-NP-1	151	148	286	実施例
1-117	C 6-1-1	140	142	272	実施例
1-118	C 6-1-2	141	131	213	実施例
1-119	C 6-5-5	146	133	205	実施例
1-120	C 7-A-4	142	144	272	実施例
1-121	C 7-A-9	134	139	255	実施例

10

20

30

40

【1129】

【表5】

素子	化合物	発光輝度	発光効率	耐久性	備考
1-122	C 7-A-10	137	134	176	実施例
1-123	C 7-C-8	145	147	256	実施例
1-124	C 7-D-1	140	144	188	実施例
1-125	C 7-E-6	133	140	175	実施例
1-126	C 7-E-11	125	119	199	実施例
1-127	C 7-H-4	136	135	206	実施例
1-128	C 7-H-7	128	117	195	実施例
1-129	C 7-H-10	135	134	292	実施例
1-130	C 8-1-1	122	114	296	実施例
1-131	C 8-1-4	149	140	241	実施例
1-132	C 8-1-7	128	118	285	実施例
1-133	C 8-2-3	127	121	212	実施例
1-134	C 8-2-5	130	134	305	実施例
1-135	C 8-3-1	141	141	272	実施例
1-136	C 8-4-1	148	144	175	実施例
1-137	C 8-4-3	138	140	284	実施例
1-138	C 8-4-5	123	125	208	実施例
1-139	C 8-5-2	143	147	232	実施例
1-140	C 8-5-5	144	151	227	実施例
1-141	C 8-6-1	127	117	207	実施例
1-142	C 8-6-5	142	146	163	実施例
1-143	C 8-6-8	132	127	299	実施例
1-144	1	134	142	289	実施例
1-145	4	145	154	263	実施例
1-146	10	129	135	244	実施例
1-147	11	136	142	255	実施例
1-148	C 9-A-1	128	123	183	実施例
1-149	C 9-A-2	130	124	165	実施例
1-150	C 9-A-3	125	124	254	実施例
1-151	(C-1)/(A-9)	148	154	160	実施例
1-152	(D-1)/(B-3)	132	121	291	実施例
1-153	(D-1)/(B-1)	148	136	224	実施例
1-154	C11-7	139	129	218	実施例
1-155	C11-39	127	132	222	実施例
1-156	C11-63	144	139	304	実施例
1-157	C12-A-1	126	134	192	実施例
1-158	C12-A-2	149	148	280	実施例
1-159	C12-A-3	146	137	285	実施例
1-160	D1-1-8	126	126	250	実施例
1-161	D1-2-2	149	149	163	実施例
1-162	D1-2-3	124	122	268	実施例

10

20

30

40

【1130】

【表6】

素子	化合物	発光輝度	発光効率	耐久性	備考
1-163	D 1-3-1	149	144	169	実施例
1-164	D 1-4-4	146	148	304	実施例
1-165	D 1-5-2	122	124	221	実施例
1-166	D 1-6-3	146	139	225	実施例
1-167	D 1-7-1	132	133	163	実施例
1-168	D 1-7-4	145	143	194	実施例
1-169	D 2-1-4	146	154	184	実施例
1-170	D 2-2-3	135	127	182	実施例
1-171	D 2-3-1	141	146	166	実施例
1-172	D 2-4-3	142	139	188	実施例
1-173	D 2-5-8	137	125	267	実施例
1-174	D 2-6-1	135	128	166	実施例
1-175	D 3-1-6	145	144	290	実施例
1-176	D 3-1-9	148	140	300	実施例
1-177	D 3-2-3	124	113	223	実施例
1-178	D 3-3-4	124	128	167	実施例
1-179	D 3-5-2	143	131	158	実施例
1-180	D 3-6-5	139	133	156	実施例
1-181	D 3-8-1	126	116	294	実施例

10

20

30

## 【1131】

表2～6に明らかであるとおり、本発明の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子は高い発光輝度と発光効率、さらに大幅に改善された耐久性を有している。また表2～6に記載した以外にも、例示化合物A 1-1-1～A 1-6-17、A 2-1-1～A 2-7-7、B 1-(I)-1～B 1-(II)-110、B 2-1～B 2-33、B 3-1～B 3-15、B 4-1～B 4-20、B 5-1-1～B 5-3-6、B 6-1-1～B 6-2-23、B 7-1～B 7-32、B 8-1～B 8-76、B 9-1～B 9-54、B 10-1～B 10-15、B 11-1-1～B 11-4-4、C 1-1-1～C 1-9-5、C 2-1-1～C 2-7-4、C 4-1～C 4-15、C 5-1～C 5-20、C 6-1～C 6-50、C 6-NT-1～C 6-NT-20、C 6-NP-1～C 6-NP-16、C 6-1-1～C 6-2-6、C 6-5-1～C 6-5-12、C 7-A-1～C 7-I-8、C 8-1-1～C 8-6-14、1～17、C 9-A-1～C 9-A-16、一般式(C 10-1)で表されるその他の具体的化合物、C 11-1～C 11-63、C 12-A-1～C 12-A-15、D 1-1-1～D 1-7-4、D 2-1-1～D 2-6-4、D 3-1-1～D 3-8-5等を発光ホストに用いて構成した素子において、同様の効果が得られた。

40

## 【1132】

## 実施例2

実施例1に記載した有機エレクトロルミネッセンス素子1-1の電子輸送層に用いた前記BCに代えて表7～9に記載した化合物を用いた以外は、有機エレクトロルミネッセンス

50



素子 1-1 と同様の方法にて、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子を作製した。実施例 1 と同様に発光輝度、発光効率、および耐久性を評価した結果を、B C に代えて用いた本発明に係る化合物とともに表 7 ~ 9 に示す。

【 1 1 3 3 】

【表 7】

素子	化合物	発光輝度	発光効率	耐久性	備 考
1-1	B C	100	100	100	比較例
2-1	A 1-1-8	143	131	205	実施例
2-2	A 1-2-2	155	160	280	実施例
2-3	A 1-2-4	135	132	227	実施例
2-4	A 1-3-5	130	120	277	実施例
2-5	A 1-4-1	130	130	253	実施例
2-6	A 1-5-2	147	147	214	実施例
2-7	A 1-5-5	164	169	216	実施例
2-8	A 1-6-2	143	132	226	実施例
2-9	A 1-6-15	148	136	239	実施例
2-10	A 2-1-4	136	131	220	実施例
2-11	A 2-1-5	147	156	197	実施例
2-12	A 2-2-11	150	139	286	実施例
2-13	A 2-4-6	135	127	205	実施例
2-14	A 2-4-9	160	162	247	実施例
2-15	A 2-5-5	139	142	256	実施例
2-16	A 2-5-8	138	129	166	実施例
2-17	A 2-6-1	150	150	270	実施例
2-18	A 2-6-3	166	153	244	実施例
2-19	B 1-(I)-9	133	133	285	実施例
2-20	B 1-(I)-38	155	142	230	実施例
2-21	B 1-(I)-69	157	142	310	実施例
2-22	B 1-(II)-12	163	169	274	実施例
2-23	B 1-(II)-40	130	131	257	実施例
2-24	B 1-(II)-64	136	127	184	実施例
2-25	B 2-3	149	136	220	実施例
2-26	B 2-18	148	142	256	実施例
2-27	B 2-25	137	133	209	実施例
2-28	B 3-1	139	145	206	実施例
2-29	B 3-4	154	159	180	実施例
2-30	B 3-7	138	129	271	実施例
2-31	B 3-9	140	140	227	実施例
2-32	B 3-11	138	141	230	実施例
2-33	B 4-1	135	143	240	実施例
2-34	B 4-3	126	127	296	実施例
2-35	B 4-19	157	158	236	実施例
2-36	B 5-1-1	163	152	180	実施例
2-37	B 5-1-5	153	158	169	実施例
2-38	B 5-1-12	127	126	256	実施例
2-39	B 5-2-2	152	146	251	実施例
2-40	B 5-2-8	150	145	206	実施例

【 1 1 3 4 】

【表 8】

素子	化合物	発光輝度	発光効率	耐久性	備考
2-41	B 5-2-15	165	164	296	実施例
2-42	B 5-3-1	127	132	254	実施例
2-43	B 5-3-2	131	136	169	実施例
2-44	B 6-1-1	139	132	191	実施例
2-45	B 6-1-2	128	121	263	実施例
2-46	B 6-1-5	166	153	253	実施例
2-47	B 6-2-3	145	133	177	実施例
2-48	B 6-2-11	129	124	311	実施例
2-49	B 6-2-18	161	170	178	実施例
2-50	B 7-1	144	135	230	実施例
2-51	B 7-8	148	152	309	実施例
2-52	B 7-19	137	127	187	実施例
2-53	B 7-25	127	115	250	実施例
2-54	B 7-28	145	143	295	実施例
2-55	B 8-3	152	149	199	実施例
2-56	B 8-8	140	141	246	実施例
2-57	B 8-18	151	142	244	実施例
2-58	B 8-59	165	168	216	実施例
2-59	B 8-70	128	119	280	実施例
2-60	B 9-8	139	137	258	実施例
2-61	B 9-12	133	125	303	実施例
2-62	B 9-28	156	145	227	実施例
2-63	B 9-42	136	142	239	実施例
2-64	B 9-53	135	144	279	実施例
2-65	B 10-3	143	132	211	実施例
2-66	B 10-4	129	129	281	実施例
2-67	B 10-11	145	140	266	実施例
2-68	B 11-1-1	137	135	256	実施例
2-69	B 11-1-5	132	125	294	実施例
2-70	B 11-1-20	144	146	261	実施例
2-71	B 11-2-1	163	171	311	実施例
2-72	B 11-3-4	163	160	299	実施例
2-73	B 11-4-1	153	158	189	実施例
2-74	B 11-4-2	136	128	232	実施例
2-75	B 11-4-4	146	155	281	実施例
2-76	1	128	119	209	実施例
2-77	4	141	132	288	実施例
2-78	10	141	136	254	実施例
2-79	11	131	135	292	実施例
2-80	D 1-1-8	150	138	223	実施例
2-81	D 1-2-2	148	154	206	実施例

10

20

30

40

【1135】

【表9】

素子	化合物	発光輝度	発光効率	耐久性	備考
2-82	D 1-2-3	127	120	260	実施例
2-83	D 1-3-1	154	156	261	実施例
2-84	D 1-4-4	164	159	303	実施例
2-85	D 1-5-2	134	137	235	実施例
2-86	D 1-6-3	154	146	167	実施例
2-87	D 1-7-1	141	142	315	実施例
2-88	D 1-7-4	166	164	281	実施例
2-89	D 2-1-4	130	132	226	実施例
2-90	D 2-2-3	144	137	186	実施例
2-91	D 2-3-1	136	133	229	実施例
2-92	D 2-4-3	132	125	305	実施例
2-93	D 2-5-8	153	147	173	実施例
2-94	D 2-6-1	167	160	219	実施例
2-95	D 3-1-6	138	135	305	実施例
2-96	D 3-1-9	157	143	302	実施例
2-97	D 3-2-3	137	132	250	実施例
2-98	D 3-3-4	142	138	245	実施例
2-99	D 3-5-2	126	120	252	実施例
2-100	D 3-6-5	132	122	296	実施例
2-101	D 3-8-1	129	135	255	実施例
2-102	F 1-1-5	167	152	272	実施例
2-103	F 1-1-17	158	151	221	実施例
2-104	F 1-1-26	141	128	148	実施例
2-105	F 1-2-1	129	119	305	実施例
2-106	F 1-3-5	161	167	269	実施例
2-107	F 1-3-6	144	147	283	実施例
2-108	F 1-3-13	167	164	173	実施例
2-109	F 1-4-1	156	162	261	実施例
2-110	F 1-4-10	148	144	300	実施例
2-111	F 1-5-1	131	132	297	実施例

## 【1136】

表7～9から明らかであるとおり、本発明の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子は高い発光輝度と発光効率、さらに大幅に改善された耐久性を有している。また表7～9に記載した以外にも、例示化合物A 1-1-1～A 1-6-17、A 2-1-1～A 2-7-7、B 1-(I)-1～B 1-(II)-1、B 2-1～B 2-33、B 3-1～B 3-15、B 4-1～B 4-20、B 5-1-1～B 5-3-6、B 6-1-1～B 6-2-23、B 7-1～B 7-32、B 8-1～B 8-76、B 9-1～B 9-54、B 10-1～B 10-15、B 11-1-1～B 11-4-4、1～17、D 1-1-1～D 1-7-4、D 2-1-1～D 2-6-4、D 3-1-1～D 3-8-5、F 1-1-1

～F1-5-7等を発光ホストに用いて構成した素子において、同様の効果が得られた。

【1137】

### 実施例3

実施例1に記載した有機エレクトロルミネッセンス素子1-1の正孔輸送層に、 $\alpha$ -NPDに代えて表10に記載した化合物を用いた以外は、有機エレクトロルミネッセンス素子1-1と同様の方法にて、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子を作成した。実施例1と同様に発光輝度、発光効率、および耐久性を評価した結果を、 $\alpha$ -NPDに代えて用いた本発明に係る化合物とともに表10に示す。

【1138】

【表10】

素子	化合物	発光輝度	発光効率	耐久性	備考
1-1	$\alpha$ -NPD	100	100	100	比較例
3-1	A1-1-8	158	155	273	実施例
3-2	A1-2-2	130	129	222	実施例
3-3	A1-2-4	137	125	188	実施例
3-4	A1-3-5	156	150	248	実施例
3-5	A1-4-1	125	129	161	実施例
3-6	A1-5-2	149	142	189	実施例
3-7	A1-5-5	127	124	161	実施例
3-8	A1-6-2	130	131	231	実施例
3-9	A1-6-15	134	131	179	実施例
3-10	A2-5-9	145	152	170	実施例
3-11	A2-5-10	126	129	211	実施例
3-12	A2-5-12	146	153	205	実施例
3-13	E1-(18)	143	133	172	実施例
3-14	E1-(29)	143	133	195	実施例
3-15	E1-(50)	151	150	191	実施例
3-16	E1-(57)	140	128	154	実施例
3-17	E2-(1)	137	130	195	実施例
3-18	E2-(20)	135	143	257	実施例
3-19	E2-(22)	132	122	249	実施例
3-20	E2-(31)	147	138	215	実施例
3-21	E2-(39)	136	135	200	実施例

【1139】

表10から明らかであるとおり、本発明の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子は高い発光輝度と発光効率、さらに大幅に改善された耐久性を有している。また表10に記載した以外にも、例示化合物A1-1-1～A1-6-17、A2-1-1～A2-7-7、E1-(1)～E1-(82)、E2-(1)～E2-(42)等を発光ホストに用

10

20

30

40

50

いて構成した素子において、同様の効果が得られた。

【1140】

実施例 4

実施例 1 に記載した有機エレクトロルミネッセンス素子 1-1 における燐光ドーパント Ir-6 を本発明に係る化合物に置き換えた以外は、有機エレクトロルミネッセンス素子 1-1 と同様の方法にて、本発明に係る有機エレクトロルミネッセンス素子 4-1 ~ 3 を作製した。さらに同様にして、有機エレクトロルミネッセンス素子 1-1 における Ir-12 を本発明に係る化合物に置き換えた素子 4-4 ~ 11 を作製した。これらの素子についても実施例 1 と同様に発光輝度、発光効率、および耐久性を評価してその結果を表 11 に示す。

【1141】

【表 11】

素子	化合物	発光輝度	発光効率	耐久性	備考
1-1	Ir-6/Ir-12	100	100	100	比較例
4-1	G1-2-6	138	145	272	実施例
4-2	G1-5-1	160	158	295	実施例
4-3	G1-5-2	161	157	154	実施例
4-4	G1-1-4	164	166	237	実施例
4-5	G1-1-12	141	142	281	実施例
4-6	G1-1-21	159	155	180	実施例
4-7	G1-2-2	171	181	170	実施例
4-8	G1-2-8	132	123	183	実施例
4-9	G1-3-2	139	138	254	実施例
4-10	G1-4-1	149	157	273	実施例
4-11	G1-4-6	148	151	275	実施例

【1142】

表 11 から明らかであるとおり、本発明の白色発光有機エレクトロルミネッセンス素子は高い発光輝度と発光効率、さらに大幅に改善された耐久性を有している。また表 11 に記載した以外にも、例示化合物 G1-1-1 ~ G1-5-6 を発光ホストに用いて構成した素子において、同様の効果が得られた。

【1143】

【発明の効果】

高効率で長寿命の、均一な白色の発光を有する有機エレクトロルミネッセンス素子が得られた。

【図面の簡単な説明】

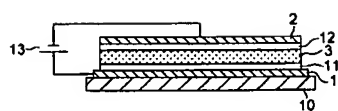
【図 1】本発明に係る白色有機エレクトロルミネッセンス素子の実施の形態の一例を示す図。

【符号の説明】

- 1 陽極
- 2 陰極
- 3 発光層
- 10 基板
- 11 正孔輸送層

## 1 2 電子輸送層

【図 1】



---

フロントページの続き(51)Int. Cl.<sup>7</sup>

F I

テーマコード (参考)

C 0 9 K 11/06 6 4 0

C 0 9 K 11/06 6 4 5

C 0 9 K 11/06 6 5 0

C 0 9 K 11/06 6 5 5

C 0 9 K 11/06 6 6 0

G 0 2 F 1/13357

H 0 5 B 33/22 B

H 0 5 B 33/22 D